

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-234137

(43)Date of publication of application : 29. 08. 2000

---

(51)Int.Cl. C22C 33/02  
B22F 1/00  
B22F 3/00  
C22C 38/00  
H01F 1/053  
H01F 1/06

---

(21)Application number : 11-291439 (71)Applicant : SUMITOMO SPECIAL  
METALS CO LTD  
(22)Date of filing : 06. 09. 1999 (72)Inventor : HIROZAWA SATORU  
KANEKIYO HIROKAZU  
SHIGEMOTO YASUTAKA

---

(30)Priority

Priority	10346700	Priority	07. 12. 1998	Priority	JP
number :		date :		country :	

---

(54) RAW MATERIAL ALLOY FOR NANOCOMPOSITE MAGNET, ITS POWDER AND PRODUCTION AND PRODUCTION OF NANOCOMPOSITE MAGNET POWDER AND MAGNET

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To efficiently produce magnet powder having a fine and homogeneous metallic structure with high reproducibility by allowing it to contain a metastable phase in which the Bragg reflection peak in X-ray diffraction lies at the position equivalent to specified crystal face spacing and controlling the intensity of the Bragg reflection peak and the intensity of the (110) Bragg scattering peak of body-centered

cubic type Fe to specified ranges.

SOLUTION: This alloy has a prescribed compsn. of Fe, rare earth elements, B and Co or one or more kinds selected from the group consisting of Al, Si, Ti, V, Cr, Mn, Ni, Cu or the like. Then, it contains a metastable phase in which the Bragg reflection peak in X-ray diffraction lies at the position equivalent to the crystal face spacing of  $0.179 \pm 0.005$  nm. Moreover, the intensity of the Bragg reflection peak is 5 to <200% to the maximum intensity of the harrow pattern, and also, the intensity of the (110) Bragg scattering peak in body-centered cubic type Fe is <5% to the maximum intensity of the harrow pattern.

---

#### LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 26.06.2000

[Date of sending the examiner's  
decision of rejection]

[Kind of final disposal of  
application other than the  
examiner's decision of rejection or  
application converted registration]

[Date of final disposal for  
application]

[Patent number] 3604308

[Date of registration] 08.10.2004

[Number of appeal against  
examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against  
examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

\* NOTICES \*

JPO and NCIP are not responsible for any  
damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

#### CLAIMS

---

[Claim(s)]

[Claim 1] A general formula  $\text{Fe}_{100-x-y}\text{R}_x\text{B}_y$ ,  $\text{Fe}_{100-x-y-z}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z$ , It is the raw material alloy for nano composite magnets expressed with  $\text{Fe}_{100-x-y-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{M}_u$  or  $\text{Fe}_{100-x-y-z-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z\text{M}_u$ . R contains the element of either Pr or Nd and both more than 90 atom %. They are the rare earth elements in which the remainder contains other lanthanides or the element more than a kind of Y less than 10% 0% or more. M aluminum, Si, Ti, V, Cr, Mn, nickel, Cu, Ga, Zr, It is an element more than a kind chosen from the group which consists of Nb, Mo, Hf, Ta, W, Pt, Pb, Au, and Ag. The presentation ratio x, and y, z and u satisfy  $2 \leq x \leq 6$ ,  $16 \leq y \leq 20$ ,  $0.2 \leq z \leq 7$ , and  $0.01 \leq u \leq 7$ . And the metastable phase Z in the location equivalent to crystal-face spacing whose Bragg reflection peak in an X diffraction is  $0.179\text{nm} \times 0.005\text{nm}$  is contained. The raw material alloy for nano composite magnets whose reinforcement of the Bragg scattering (110) peak of the body center cube mold Fe the reinforcement of said Bragg reflection peak is less than 200% 5% or more of the highest reinforcement of a halo pattern, and is less than 5% of the highest reinforcement of said halo pattern.

[Claim 2] A general formula  $\text{Fe}_{100-x-y}\text{R}_x\text{B}_y$ ,  $\text{Fe}_{100-x-y-z}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z$ , It is the raw material alloy powder for nano composite magnets expressed with  $\text{Fe}_{100-x-y-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{M}_u$  or  $\text{Fe}_{100-x-y-z-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z\text{M}_u$ . R contains the element of either Pr or Nd and both more than 90 atom %. They are the rare earth elements in which the remainder contains other lanthanides or the element more than a kind of Y less than 10% 0% or more. M aluminum, Si, Ti, V, Cr, Mn, nickel, Cu, Ga, Zr, It is an element more than a kind chosen from the group which consists of Nb, Mo, Hf, Ta, W, Pt, Pb, Au, and Ag. The presentation ratio x, and y, z and u satisfy  $2 \leq x \leq 6$ ,  $16 \leq y \leq 20$ ,  $0.2 \leq z \leq 7$ , and  $0.01 \leq u \leq 7$ . And the metastable phase Z in the location equivalent to crystal-face spacing whose Bragg reflection peak in an X diffraction is  $0.179\text{nm} \times 0.005\text{nm}$  is contained. Raw material alloy powder for nano composite magnets whose reinforcement of the Bragg scattering (110) peak of the body center cube mold Fe the reinforcement of said Bragg reflection peak is less than 200% 5% or more of the highest reinforcement of a halo pattern, and is less than 5% of the highest reinforcement of said halo pattern.

[Claim 3] A general formula  $\text{Fe}_{100-x-y}\text{R}_x\text{B}_y$ ,  $\text{Fe}_{100-x-y-z}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z$ , It is the raw material alloy for nano composite magnets expressed with  $\text{Fe}_{100-x-y-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{M}_u$  or  $\text{Fe}_{100-x-y-z-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z\text{M}_u$ . R contains the element of either Pr or Nd and both more than 90 atom %. They are the rare earth elements in which the remainder contains other lanthanides or the element more than a kind of Y less than 10% 0% or more. M aluminum, Si, Ti, V, Cr, Mn,

nickel, Cu, Ga, Zr, It is an element more than a kind chosen from the group which consists of Nb, Mo, Hf, Ta, W, Pt, Pb, Au, and Ag. In the approach the presentation ratio x, and y, z and u manufacture the raw material alloy for nano composite magnets with which are satisfied of  $2 \leq x \leq 6$ ,  $16 \leq y \leq 20$ ,  $0.2 \leq z \leq 7$ , and  $0.01 \leq u \leq 7$  By including the process which forms the molten metal of said raw material alloy, and the process to which the rapid solidification of said molten metal is carried out, and adjusting the cooling rate of said alloy on the occasion of said rapid solidification process The raw material alloy after coagulation contains the metastable phase Z in the location equivalent to crystal-face spacing whose Bragg reflection peak in an X diffraction is  $0.179\text{nm} \times 0.005\text{nm}$ . And the reinforcement of said Bragg reflection peak is less than 200% 5% or more of the highest reinforcement of a halo pattern. And the manufacture approach of the raw material alloy for nano composite magnets characterized by the reinforcement of the Bragg scattering (110) peak of the body center cube mold Fe carrying out to less than 5% of the highest reinforcement of said halo pattern.

[Claim 4] The manufacture approach of the raw material alloy for nano composite magnets according to claim 3 which includes further the process which produces powder from said raw material alloy by which rapid solidification was carried out.

[Claim 5] The manufacture approach of the raw material alloy for nano composite magnets according to claim 3 of making the cooling rate of said alloy into a  $5 \times 10^4 - 5 \times 10^6 \text{K/second}$ , and reducing the temperature of an alloy to low temperature only by 400–800 degrees C from the temperature  $T_m$  of the alloy before quenching in said rapid solidification process.

[Claim 6] A general formula  $\text{Fe}_{100-x-y}\text{R}_x\text{B}_y$ ,  $\text{Fe}_{100-x-y-z}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z$ , It is the alloy for nano composite magnets expressed with  $\text{Fe}_{100-x-y-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{Mu}$  or  $\text{Fe}_{100-x-y-z-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z\text{Mu}$ . R contains the element of either Pr or Nd and both more than 90 atom %. They are the rare earth elements in which the remainder contains other lanthanides or the element more than a kind of Y less than 10% 0% or more. M aluminum, Si, Ti, V, Cr, Mn, nickel, Cu, Ga, Zr, It is an element more than a kind chosen from the group which consists of Nb, Mo, Hf, Ta, W, Pt, Pb, Au, and Ag. The presentation ratio x, and y, z and u satisfy  $2 \leq x \leq 6$ ,  $16 \leq y \leq 20$ ,  $0.2 \leq z \leq 7$ , and  $0.01 \leq u \leq 7$ . And the metastable phase Z in the location equivalent to crystal-face spacing whose Bragg reflection peak in an X diffraction is  $0.179\text{nm} \times 0.005\text{nm}$  is contained. The reinforcement of said Bragg reflection peak is less than 200% 5% or more of the highest reinforcement of a halo pattern. And the process which prepares the

powder of the raw material alloy for nano composite magnets whose reinforcement of the Bragg scattering (110) peak of the body center cube mold Fe is less than 5% of the highest reinforcement of said halo pattern, The manufacture approach of the nano composite magnet powder which includes the process which heat-treats to the powder of said raw material alloy for nano composite magnets, and performs crystallization of a  $Fe_3B$  compound and a Fe-R-B system compound by it.

[Claim 7] The process which prepares the powder of said raw material alloy for nano composite magnets Include the process which forms the molten metal of said raw material alloy, the process to which the rapid solidification of said molten metal is carried out, the process which crushes said raw material alloy by which rapid solidification was carried out, and the process which grinds said raw material alloy, and it sets at said rapid solidification process. The manufacture approach of the nano composite magnet powder according to claim 6 which makes the cooling rate of said alloy a  $5 \times 10^4 - 5 \times 10^6 K/second$ , and is characterized by reducing the temperature of an alloy to low temperature only by 400-800 degrees C from the temperature  $T_m$  of the alloy before quenching.

[Claim 8] A general formula  $Fe_{100-x-y}R_xBy$ ,  $Fe_{100-x-y-z}R_xByCo_z$ , It is the alloy for nano composite magnets expressed with  $Fe_{100-x-y-u}R_xByMu$  or  $Fe_{100-x-y-z-u}R_xByCo_zMu$ . R contains the element of either Pr or Nd and both more than 90 atom %. They are the rare earth elements in which the remainder contains other lanthanides or the element more than a kind of Y less than 10% 0% or more. M aluminum, Si, Ti, V, Cr, Mn, nickel, Cu, Ga, Zr, It is an element more than a kind chosen from the group which consists of Nb, Mo, Hf, Ta, W, Pt, Pb, Au, and Ag. The presentation ratio x, and y, z and u satisfy  $2 \leq x \leq 6$ ,  $16 \leq y \leq 20$ ,  $0.2 \leq z \leq 7.0$ , and  $0.01 \leq u \leq 7$ . And the metastable phase Z in the location equivalent to crystal-face spacing whose Bragg reflection peak in an X diffraction is  $0.179nm \sim 0.005nm$  is contained. The reinforcement of said Bragg reflection peak is less than 200% 5% or more of the highest reinforcement of a halo pattern. And the process which prepares the powder of the raw material alloy for nano composite magnets whose reinforcement of the Bragg scattering (110) peak of the body center cube mold Fe is less than 5% of the highest reinforcement of said halo pattern, It heat-treats to the powder of said raw material alloy for nano composite magnets. By it The manufacture approach of the nano composite magnet which includes the process which performs crystallization of a  $Fe_3B$  compound and a Fe-R-B system compound, and the process which forms a Plastic solid using the powder of the raw material alloy after said heat treatment.

[Claim 9] The process which prepares the powder of said raw material alloy for nano composite magnets Include the process which forms the molten metal of said raw material alloy, the process to which the rapid solidification of said molten metal is carried out, the process which crushes said raw material alloy by which rapid solidification was carried out, and the process which grinds said raw material alloy, and it sets at said rapid solidification process. The manufacture approach of the nano composite magnet according to claim 8 which makes the cooling rate of said alloy a  $5 \times 10^4 - 5 \times 10^6$  K/second, and is characterized by reducing the temperature of an alloy to low temperature only by 400-800 degrees C from the temperature  $T_m$  of the alloy before quenching.

[Claim 10] The process which forms said Plastic solid is the manufacture approach of a nano composite magnet including the process which produces a bond magnet using the powder of the raw material alloy after said heat treatment according to claim 8 or 9.

[Claim 11] The motor equipped with the nano composite magnet manufactured by the manufacture approach of a nano composite magnet according to claim 8, 9, or 10.

---

[Translation done.]

\* NOTICES \*

JPO and NCIPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

#### DETAILED DESCRIPTION

---

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the manufacture approach of a nano composite magnet that the microcrystal of a Fe<sub>3</sub>B compound and the microcrystal of a Fe-R-B system compound were intermingled. It is related with the manufacture approach of the raw material alloy for manufacturing a nano composite magnet especially and its powder, and a raw material alloy, and the manufacture approach of

nano composite magnet powder or a nano composite magnet. Moreover, this invention relates also to the motor equipped with the nano composite magnet.

[0002]

[Description of the Prior Art] A Fe<sub>3</sub>B/Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B system nano composite magnet is a magnet which the Fe<sub>3</sub>B microcrystal which is a soft magnetism phase, and the Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B microcrystal which is a hard magnetism phase were distributed over homogeneity, and both combined magnetically by the exchange interaction. These microcrystals have the size of NANOMETORU (nm) order, and since they constitute the organization (nano composite organization) which both the microcrystals phase compound-ized, they are called the "nano composite magnet."

[0003] A nano composite magnet can demonstrate the magnet property which was excellent with magnetic association with a hard magnetism phase, though a soft magnetism phase is included. Moreover, the content of rare earth elements is low stopped as a whole as a result of existence of the soft magnetism phase which does not contain rare earth elements, such as Nd. This is convenient, also when reducing a magnetic manufacturing cost and supplying a magnet to stability.

[0004] Once such a nano composite magnet quenches the fused raw material alloy and makes it amorphous by it, it is manufactured using the approach of depositing a microcrystal, by heat treatment.

[0005] The alloy of an amorphous state is produced using melt spinning techniques, such as the piece rolling method, and that [ its ] of \*\*\*\* is common. A melt spinning technique flows down a molten metal-like raw material alloy on the periphery front face of the rotating cooling roller, and makes a raw material alloy quench and solidify, when only a cooling roller and a short time contact a molten metal raw material alloy. When based on this approach, control of a cooling rate is performed by adjusting the rotation peripheral velocity of a cooling roller.

[0006] The alloy which solidified and is separated from a cooling roller becomes the ribbon (thin band) configuration prolonged thinly and for a long time in the peripheral-velocity direction. After crushing and flake-izing this alloy thin band with a fracture machine, disintegration of it is ground and carried out to finer size by the grinder.

[0007] Then, heat treatment for crystallization is performed. A Fe<sub>3</sub>B microcrystal and a Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B microcrystal will be generated by this heat treatment, and both will be magnetically combined by the exchange interaction.

[0008]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] It is important when what kind of metal texture is formed by heat treatment raises a magnet property. However, this heat treatment had the trouble of some [ the viewpoint of a controllability and repeatability ]. That is, as a result of big heat's occurring at the crystallization reaction of an amorphous raw material alloy for a short time, there was a problem that control of the alloy temperature by the thermal treatment equipment was difficult. Since the temperature control tended to have lapsed into disabling when it is going to heat-treat to a lot of raw material alloy powder especially, it becomes impossible to have heat-treated only to the raw material alloy powder of every small quantity, and there was a problem that a processing rate (powder throughput per unit time amount) will fall. This had become the big trouble for fertilization of magnet powder. [0009] This invention is made in view of these many points, and the main purpose lessens crystallization heat of reaction, and is to offer the raw material alloy for nano composite magnets suitable for manufacturing efficiently the magnet powder which had a detailed and homogeneous metal texture by it with sufficient repeatability (powder), and its manufacture approach.

[0010] Moreover, other purposes of this invention are to offer the manufacture approach of nano composite magnet powder excellent in the magnet engine performance, and the manufacture approach of a nano composite magnet.

[0011] The purpose of further others of this invention is to offer the motor equipped with the nano composite magnet with the property which was excellent in this way.

[0012]

[Means for Solving the Problem] The raw material alloy for nano composite magnets by this invention A general formula  $\text{Fe}_{100-x-y}\text{R}_x\text{B}_y$ ,  $\text{Fe}_{100-x-y-z}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z$ , It is the raw material alloy for nano composite magnets expressed with  $\text{Fe}_{100-x-y-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{M}_u$  or  $\text{Fe}_{100-x-y-z-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z\text{M}_u$ . R contains the element of either Pr or Nd and both more than 90 atom %. They are the rare earth elements in which the remainder contains other lanthanides or the element more than a kind of Y less than 10% 0% or more. M aluminum, Si, Ti, V, Cr, Mn, nickel, Cu, Ga, Zr, It is an element more than a kind chosen from the group which consists of Nb, Mo, Hf, Ta, W, Pt, Pb, Au, and Ag. The presentation ratio x, and y, z and u satisfy  $2 \leq x \leq 6$ ,  $16 \leq y \leq 20$ ,  $0.2 \leq z \leq 7$ , and  $0.01 \leq u \leq 7$ . And the metastable phase Z in the location equivalent to crystal-face spacing whose Bragg reflection peak in an X diffraction is  $0.179\text{nm} \times 0.005\text{nm}$  is contained. The reinforcement of said Bragg reflection peak is less than



200% 5% or more of the highest reinforcement of a halo pattern, and the reinforcement of the Bragg scattering (110) peak of the body center cube mold Fe is less than 5% of the highest reinforcement of said halo pattern.

[0013] The raw material alloy powder for nano composite magnets by this invention A general formula  $\text{Fe}_{100-x-y}\text{R}_x\text{B}_y$ ,  $\text{Fe}_{100-x-y-z}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z$ , It is the raw material alloy powder for nano composite magnets expressed with  $\text{Fe}_{100-x-y-z-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{M}_u$  or  $\text{Fe}_{100-x-y-z-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z\text{M}_u$ . R contains the element of either Pr or Nd and both more than 90 atom %. They are the rare earth elements in which the remainder contains other lanthanides or the element more than a kind of Y less than 10% 0% or more. M aluminum, Si, Ti, V, Cr, Mn, nickel, Cu, Ga, Zr, It is an element more than a kind chosen from the group which consists of Nb, Mo, Hf, Ta, W, Pt, Pb, Au, and Ag. The presentation ratio x, and y, z and u satisfy  $2 \leq x \leq 6$ ,  $16 \leq y \leq 20$ ,  $0.2 \leq z \leq 7$ , and  $0.01 \leq u \leq 7$ . And the metastable phase Z in the location equivalent to crystal-face spacing whose Bragg reflection peak in an X diffraction is  $0.179\text{nm} \sim 0.005\text{nm}$  is contained. The reinforcement of said Bragg reflection peak is less than 200% 5% or more of the highest reinforcement of a halo pattern, and the reinforcement of the Bragg scattering (110) peak of the body center cube mold Fe is less than 5% of the highest reinforcement of said halo pattern.

[0014] The manufacture approach of the raw material alloy for nano composite magnets A general formula  $\text{Fe}_{100-x-y}\text{R}_x\text{B}_y$ ,  $\text{Fe}_{100-x-y-z}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z$ , It is the raw material alloy for nano composite magnets expressed with  $\text{Fe}_{100-x-y-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{M}_u$  or  $\text{Fe}_{100-x-y-z-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z\text{M}_u$ . R contains the element of either Pr or Nd and both more than 90 atom %. They are the rare earth elements in which the remainder contains other lanthanides or the element more than a kind of Y less than 10% 0% or more. M aluminum, Si, Ti, V, Cr, Mn, nickel, Cu, Ga, Zr, It is an element more than a kind chosen from the group which consists of Nb, Mo, Hf, Ta, W, Pt, Pb, Au, and Ag. In the approach the presentation ratio x, and y, z and u manufacture the raw material alloy for nano composite magnets with which are satisfied of  $2 \leq x \leq 6$ ,  $16 \leq y \leq 20$ ,  $0.2 \leq z \leq 7$ , and  $0.01 \leq u \leq 7$  By including the process which forms the molten metal of said raw material alloy, and the process to which the rapid solidification of said molten metal is carried out, and adjusting the cooling rate of said alloy on the occasion of said rapid solidification process The raw material alloy after coagulation contains the metastable phase Z in the location equivalent to crystal-face spacing whose Bragg reflection peak in an X diffraction is  $0.179\text{nm} \sim 0.005\text{nm}$ . And the reinforcement of said Bragg reflection peak is less than 200% 5% or more of the highest

reinforcement of a halo pattern, and the reinforcement of the Bragg scattering (110) peak of the body center cube mold Fe carries out to less than 5% of the highest reinforcement of said halo pattern.

[0015] The process which produces powder from said raw material alloy by which rapid solidification was carried out may be included further.

[0016] In said rapid solidification process, it is desirable to make the cooling rate of said alloy into a  $5 \times 10^4 - 5 \times 10^6$  K/second, and to reduce the temperature of an alloy to low temperature only by 400–800 degrees C from the temperature  $T_m$  of the alloy before quenching.

[0017] The manufacture approach of the nano composite magnet powder by this invention A general formula  $Fe_{100-x-y}R_xBy$ ,  $Fe_{100-x-y-z}R_xByCo_z$ , It is the alloy for nano composite magnets expressed with  $Fe_{100-x-y-u}R_xByMu$  or  $Fe_{100-x-y-z-u}R_xByCo_zMu$ . R contains the element of either Pr or Nd and both more than 90 atom %. They are the rare earth elements in which the remainder contains other lanthanides or the element more than a kind of Y less than 10% 0% or more. M aluminum, Si, Ti, V, Cr, Mn, nickel, Cu, Ga, Zr, It is an element more than a kind chosen from the group which consists of Nb, Mo, Hf, Ta, W, Pt, Pb, Au, and Ag. The presentation ratio x, and y, z and u satisfy  $2 \leq x \leq 6$ ,  $16 \leq y \leq 20$ ,  $0.2 \leq z \leq 7$ , and  $0.01 \leq u \leq 7$ . And the metastable phase Z in the location equivalent to crystal-face spacing whose Bragg reflection peak in an X diffraction is  $0.179nm \times 0.005nm$  is contained. The reinforcement of said Bragg reflection peak is less than 200% 5% or more of the highest reinforcement of a halo pattern. And the process which prepares the powder of the raw material alloy for nano composite magnets whose reinforcement of the Bragg scattering (110) peak of the body center cube mold Fe is less than 5% of the highest reinforcement of said halo pattern, It heat-treats to the powder of said raw material alloy for nano composite magnets, and the process which performs crystallization of a  $Fe_3B$  compound and a Fe-R-B system compound by it is included.

[0018] The process which prepares the powder of said raw material alloy for nano composite magnets Include the process which forms the molten metal of said raw material alloy, the process to which the rapid solidification of said molten metal is carried out, the process which crushes said raw material alloy by which rapid solidification was carried out, and the process which grinds said raw material alloy, and it sets at said rapid solidification process. It is desirable to make the cooling rate of said alloy into a  $5 \times 10^4 - 5 \times 10^6$  K/second, and to reduce the temperature of an alloy to low temperature only by 400–800 degrees C from the temperature  $T_m$  of the alloy before quenching.

[0019] The manufacture approach of the nano composite magnet by this

invention A general formula  $\text{Fe}_{100-x-y}\text{R}_x\text{B}_y$ ,  $\text{Fe}_{100-x-y-z}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z$ , It is the alloy for nano composite magnets expressed with  $\text{Fe}_{100-x-y-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{M}_u$  or  $\text{Fe}_{100-x-y-z-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z\text{M}_u$ . R contains the element of either Pr or Nd and both more than 90 atom %. They are the rare earth elements in which the remainder contains other lanthanides or the element more than a kind of Y less than 10% 0% or more. M aluminum, Si, Ti, V, Cr, Mn, nickel, Cu, Ga, Zr, It is an element more than a kind chosen from the group which consists of Nb, Mo, Hf, Ta, W, Pt, Pb, Au, and Ag. The presentation ratio x, and y, z and u satisfy  $2 \leq x \leq 6$ ,  $16 \leq y \leq 20$ ,  $0.2 \leq z \leq 7.0$ , and  $0.01 \leq u \leq 7$ . And the metastable phase Z in the location equivalent to crystal-face spacing whose Bragg reflection peak in an X diffraction is  $0.179\text{nm} \times 0.005\text{nm}$  is contained. The reinforcement of said Bragg reflection peak is less than 200% 5% or more of the highest reinforcement of a halo pattern. And the process which prepares the powder of the raw material alloy for nano composite magnets whose reinforcement of the Bragg scattering (110) peak of the body center cube mold Fe is less than 5% of the highest reinforcement of said halo pattern, It heat-treats to the powder of said raw material alloy for nano composite magnets, and the process which performs crystallization of a  $\text{Fe}_3\text{B}$  compound and a Fe-R-B system compound by it, and the process which forms a Plastic solid using the powder of the raw material alloy after said heat treatment are included.

[0020] The process which prepares the powder of said raw material alloy for nano composite magnets Include the process which forms the molten metal of said raw material alloy, the process to which the rapid solidification of said molten metal is carried out, the process which crushes said raw material alloy by which rapid solidification was carried out, and the process which grinds said raw material alloy, and it sets at said rapid solidification process. It is desirable to make the cooling rate of said alloy into a  $5 \times 10^4 - 5 \times 10^6 \text{K/second}$ , and to reduce the temperature of an alloy to low temperature only by 400-800 degrees C from the temperature  $T_m$  of the alloy before quenching.

[0021] With a desirable operation gestalt, the process which forms said Plastic solid includes the process which produces a bond magnet using the powder of the raw material alloy after said heat treatment.

[0022] The motor by this invention is equipped with the nano composite magnet manufactured by the manufacture approach of the above-mentioned nano composite magnet.

[0023]

[Embodiment of the Invention] In this invention, after a general formula produces the molten metal of the alloy for nano composite magnets

expressed with any of  $\text{Fe}_{100-x-y}\text{R}_x\text{B}_y$ ,  $\text{Fe}_{100-x-y-z}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z$ ,  $\text{Fe}_{100-x-y-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{Mu}$ , or  $\text{Fe}_{100-x-y-z-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z\text{Mu}$  they are, the alloy molten metal is quenched and solidified.

[0024] R contains the element of either Pr or Nd and both more than 90 atom % here. They are the rare earth elements in which the remainder contains other lanthanides or the element more than a kind of Y less than 10% 0% or more. M is an element more than a kind chosen from the group which consists of aluminum, Si, Ti, V, Cr, Mn, nickel, Cu, Ga, Zr, Nb, Mo, Hf, Ta, W, Pt, Pb, Au, and Ag. The presentation ratio x, and y, z and u satisfy  $2 \leq x \leq 6$ ,  $16 \leq y \leq 20$ ,  $0.2 \leq z \leq 7$ , and  $0.01 \leq u \leq 7$ . About these reasons for presentation limitation, it mentions later.

[0025] It found out that it was desirable to make the cooling rate into a  $5 \times 10^4 - 5 \times 10^6 \text{K/second}$  on the occasion of the cooling coagulation of an alloy molten metal as for this invention person. Moreover, it turned out that the alloy which carried out cooling coagulation with such a cooling rate, and its powder are in a metallic glass condition which is described below. That is, the metastable phase Z in the location equivalent to crystal-face spacing whose Bragg scattering peak in a powder X diffraction is  $0.179 \text{nm} \times 0.005 \text{nm}$  is contained, and the reinforcement of a Bragg reflection peak is less than 200% 5% or more of the highest reinforcement of a halo pattern, and the reinforcement of the Bragg scattering (110) peak of the body center cube mold Fe is less than 5% of the highest reinforcement of said halo pattern.

[0026] When it heat-treats to a such raw material alloy or its powder, the nano composite magnet structure where crystallization of a  $\text{Fe}_3\text{B}$  microcrystal and a R-Fe-B system microcrystal arose, and had the outstanding magnet property by it will be discovered.

[0027] Before the raw material alloy of this invention receives heat treatment for crystallization, it has metallic glass structure, and it is checked from the powder X diffraction that long-distance periodic order nature is not shown. According to the experiment of an invention-in-this-application person, by adjusting the cooling rate of an alloy molten metal as mentioned above, the metallic glass-like alloy containing the above-mentioned metastable phase Z can be formed, and the magnetic properties which were extremely excellent with subsequent heat treatment will be demonstrated.

[0028] The 1st reason the magnet manufactured using the metallic glass alloy of this invention is excellent in a magnet property is considered because the minute precursor (embryo) required for crystal growth, such as  $\text{Fe}_3\text{B}$ , is distributing by high density in the alloy in an above-mentioned metallic glass condition. Therefore, when it heat-treats,

crystal growth will advance by using as a nucleus short-distance order which the precursor of a large number which exist in an alloy shows, consequently the detailed and homogeneous crystalline structure will be formed. Moreover, since crystallization of Fe<sub>3</sub>B advances by atomic diffusion of the ultrashort range, there is also an advantage of becoming possible to attain the crystallization at comparatively low temperature.

[0029] Crystallization of Fe<sub>3</sub>B is produced at the temperature of 590–600 degrees C. With progress of this crystallization, rare earth elements, such as Nd, can begin to come to the amorphous field around Fe<sub>3</sub>B, and the presentation of that part approaches Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B. Consequently, Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B is crystallized, without needing long-distance atomic diffusion, in spite of being a ternary compound with complicated structure. Only about 20–90 degrees C of the temperature which Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B crystallizes are higher than the temperature which crystallization of Fe<sub>3</sub>B completes, and it is about 610–690 degrees C.

[0030] Thus, with the raw material alloy by this invention, since crystallization of Fe<sub>3</sub>B and crystallization of Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B can be performed separately in a different temperature requirement, the big heat of reaction accompanying crystallization does not arise for a short time, and the detailed metal texture which is about 20nm can be generated with sufficient repeatability. This is important when controlling the heat treatment process for alloy crystallization. That is, it is because it becomes impossible to control the temperature of an alloy to predetermined within the limits when crystallization progresses at once with big heat of reaction.

[0031] Although the actual structure is not checked yet, since a metastable phase Z has a steep diffraction line peak in a specific location by the X diffraction, it can grasp the existence quantitatively. A metastable phase Z also shows the Bragg scattering peak of this level mostly to the location which shows a sharp Bragg scattering peak to the location equivalent to 0.179nm\*\*0.005nm crystal-face spacing, and is equivalent to a 0.417nm\*\*0.005nm crystal-face spacing and 0.267nm\*\*0.005nm crystal-face spacing. Moreover, in addition to these, a Bragg peak may be shown also in 0.134nm\*\*0.005nm.

[0032] It is thought that the metastable phase Z which existed in the alloy after rapid solidification is pyrolyzed by heat treatment for magnet-izing, and finally generates metastable phase Fe<sub>3</sub>B. this process is temperature lower than the temperature which generation of the ununiformity nucleus of Fe<sub>3</sub>B produces most frequently, is boiled comparatively and considered to go on at the temperature of the large

range.

[0033] A metastable phase Z is formed near the front face of a coagulation thin band, when the cooling rate at the time of rapid solidification is small in comparison, and like [ in case a cooling rate is the conventional rapid solidification approach ], when large, it has the description which is not generated. In this invention, the cooling rate is adjusted so that only a suitable amount may generate a metastable phase Z. That is, in this invention, existence of a metastable phase Z is used as an index in the case of determining a suitable cooling rate. If a cooling rate is reset up based on the amount of generation of a metastable phase Z even when the presentation of an alloy is changed or a cooling system is changed, the thing of the condition optimal as a raw material alloy of this invention will be obtained simply. In addition, it is unknown whether the metastable phase Z itself has played the big role for microcrystal-izing. However, if quenching conditions are controlled to be formed at a rate with a metastable phase Z, it turns out that high magnetic properties are acquired by subsequent heat treatment.

[0034] Hereafter, when a cooling rate separates from the predetermined range, it explains what arises.

[0035] First, the case where a cooling rate is too quick is explained.

[0036] If a cooling rate is too quick, an alloy will be in a nearly perfect amorphous state. In that case, since there are very few sites which the ununiformity nucleus of Fe<sub>3</sub>B generates, the crystal grain of Fe<sub>3</sub>B will grow greatly by next heat treatment. Consequently, the detailed crystalline structure cannot be formed, but coercive force etc. declines and outstanding magnetic properties are no longer demonstrated.

[0037] Thus, when a cooling rate is too quick, generation of a metastable phase Z is controlled. When the reinforcement of the Bragg scattering peak in an X diffraction estimates the rate of an abundance ratio, the Bragg scattering peak intensity by the metastable phase Z turns into less than 5% of the highest reinforcement of a halo pattern, and is in the level hardly observed. In this case, since the nucleus for Fe<sub>3</sub>B crystallization is generated, big driving force is needed, and crystallization reaction temperature moves to an elevated-temperature side. And since a crystallization reaction will advance explosively once a crystallization reaction begins in that case, a lot of heat occurs for a short time, and raw material alloy temperature becomes high. Consequently, raw material alloy temperature rises even on the level which atomic diffusion produces at high speed, the controllability of a reaction process is lost, and only a big and rough metal texture is

obtained.

[0038] When performing heat treatment for the above-mentioned crystallization using the continuation heat-treating method, the raw material alloy powder amount of supply per unit time amount is stopped low, and it can be necessary to be made to carry out to a perimeter by thermal diffusion the fly off of the crystallization heat of reaction. Also when it replaces with the continuation heat-treating method and is based on a batch-processing method, since it is the same, it is necessary to restrict the throughput of raw material alloy powder greatly.

[0039] Next, the case where a cooling rate is too slow is explained.

[0040] If a cooling rate is too slow, periodic regularity will be formed over the long range. In many cases, Fe which is a stabilization phase will crystallize. Thus, if a cooling rate is too slow, the reinforcement of the Bragg reflection peak of a crystal phase will lap on a halo pattern, and will come to be observed. When it is observed by the location whose Bragg scattering peak which is the strongest line of the body center cube mold Fe (110) is 0.203nm of spacings and the reinforcement turns into 5% or more of the highest reinforcement of a halo pattern, it can judge "a cooling rate is too slow." Although Fe may be gamma iron of a parent phase at a generate-time point, it is metamorphosing into body center cube iron at the room temperature.

[0041] Finally, although a cooling rate is not slow to the degree which the crystalline nucleus of Fe generates, the case where it has not reached is explained to a desirable cooling rate. Since the crystalline-germ embryo has grown to be an already big organization, it becomes impossible in this case, to form the detailed crystalline structure by the next heat treatment process. The alloy in this case contains many metastable phases Z, and according to the powder X diffraction, the reinforcement of the Bragg reflection peak of a metastable phase Z becomes very high, and it exceeds 200% of the highest reinforcement of a halo pattern.

[0042] It becomes impossible thus, only for a big and rough metal texture to generate the raw material alloy of a condition with the very big ratio of a metastable phase Z by next heat treatment. The reason is that the grain growth of Fe which is a balanced phase arises preferentially while the karyogenesis sites of  $\text{Fe}_3\text{B}$  decrease in number. If the metal texture after heat treatment makes it big and rough, it will become inadequate magnetic joining together through the exchange interaction between the magnetization direction of  $\text{Fe}_3\text{B}$  or Fe and the magnetization direction of  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ . Consequently, it is no longer made

to discover the high magnetic properties which an original nano composite magnet has.

[0043] It is as follows when the special feature of the raw material alloy for nano composite magnets by this invention is arranged.

[0044] 1. Since crystallization of Fe<sub>3</sub>B advances by atomic diffusion of the ultrashort range, crystallization of Fe<sub>3</sub>B begins at low temperature comparatively. Consequently, a crystallization reaction rate does not become quick too much.

[0045] 2. The crystallization nucleus of Fe<sub>3</sub>B distributes by high density, and since a thermal equilibrium phase does not crystallize big and rough, a detailed crystallization metal texture can be formed.

[0046] 3. Crystallization can be performed with a sufficient controllability, without being accompanied by big crystallization heat of reaction. Consequently, the raw material powder throughput in a heat treatment process can be increased, without degrading a magnet property.

[0047] 4. Since a crystalline nucleus required for crystallization of Fe<sub>3</sub>B exists by high density in a raw material alloy, a detailed and uniform metal texture can be formed by magnet-ized heat treatment. This enables the manifestation of a high magnet property.

[0048] In order to make a cooling rate into a  $5 \times 10^4 - 5 \times 10^6$  K/second, while contacting a molten metal on the periphery front face of the rotating cooling roller, carrying out cooling quickly and carrying out high-speed coagulation of a part of molten metal, it is required to pull apart promptly the alloy thin band made by high-speed coagulation from a molten metal. By doing so, the inflow of the heat from a molten metal to an alloy thin band can be intercepted, and can carry out cooling further. Thereby, it can prevent that a crystallization phase transformation or too much structural relaxation happens in an alloy thin band. In addition, moderate structural relaxation is required because of generation of a metastable phase.

[0049] In order to perform such high-speed coagulation in the condition of having been stabilized industrially and regularly, it is required to supply the molten metal of a constant rate to a revolving roll. for that purpose, between the source of supply of a molten metal, and roll surfaces -- a molten metal -- collecting (it working as a reservoir) -- it is desirable to make it form stably. such a molten metal -- collecting -- for example, if a molten metal is rectification-ized and is injected by the pressure of fixed within the limits through the nozzle orifice heated more than the melting point, it can form (the 1st rapid solidification approach). in this way, the formed molten metal -- collecting -- it is usually called a "paddle" or a "foot."



[0050] There is the other approach of forming \*\*\*\*\* of a molten metal. For example, refractories are arranged near the periphery of the rotating cooling roller, and the space wide opened up (the migration direction of a roll surface) between refractories and a roll surface is formed. A molten metal is contacted to a roll peripheral face, and the quenching congelation of a molten metal is made to generate by pouring out a molten metal in this space and generating a basin on the roll peripheral face to rotate. It is attained also by the approach of making it moving up and pulling up this congelation from a basin with a roll peripheral face (the 2nd rapid solidification approach).

[0051] Next, the 3rd rapid solidification approach is explained. First, as a peripheral face opposes, it installs the roll of a pair, and a slit is set up among both rolls. As this clearance is put from a roll side face, a refractories wall is arranged, and the space released up by these is formed. A quenching congelation is generated by pouring out a molten metal regularly in this clearance space, and contacting a molten metal to the roll surface to rotate. At this time, a roll is rotated so that a roll surface may go caudad in the clearance part during a roll, and it turns caudad from the clearance during a roll, and a quenching congelation is discharged. It is also possible to form several pairs of roll kneaders further caudad, and to carry out cooling by the 3rd rapid solidification approach, multistage.

[0052] There is also an approach which does not need generation of molten metal \*\*\*\*\* to each above-mentioned quenching approach. It is the approach (the 4th rapid solidification approach) of throwing the spraying style of a molten metal toward the rotating roll, and making it solidify quickly. However, by such approach, a rapid solidification rate will change depending on the volume and rate of a molten metal drop which are thrown to a roll surface. and the 1- mentioned above since the volume and rate of a molten metal drop were distributed in the dozens times [ several times to ] as many range as this -- there is an inclination for the range of a quenching rate to become large compared with the 3rd rapid solidification approach. Consequently, it is necessary to opt for a setup of an operating condition experientially.

[0053] In addition, it is desirable by pouring water etc. inside a roll by the above-mentioned rapid solidification approach in any case to cool the roll itself and to hold the temperature of a roll peripheral face to constant value.

[0054] In this invention, the temperature of an alloy is reduced to low temperature only by 400-800 degrees C from the alloy temperature  $T_m$  before quenching (molten metal temperature). Also in which approach

using an above-mentioned roll kneader, the contact die length of \*\*\*\*\* of a molten metal and a roll peripheral face is difficult to carry out from an engineering viewpoint more than a certain constant value. When magnitude of molten metal \*\*\*\*\* is carried out more than the fixed range which changes in the 1st rapid solidification approach, the generation condition of molten metal \*\*\*\*\* becomes unstable, and it becomes impossible that is, to maintain a steady state. By the 2nd rapid solidification approach, since the space for molten metal \*\*\*\*\* is prepared, some of this upper limit is eased, but if the contact die length of a roll and a molten metal becomes long, since the inflow of the heat from a molten metal will be continued by the congelation, change comes to arise in the structure of a congelation. It is desirable to set contact die length to about 5mm or more 50mm or less in industrial operation from these viewpoints.

[0055] The passing speed of a roll surface is adjusted so that a desired cooling rate may be attained in the surface of action which specifies the above-mentioned contact die length. In the 1st rapid solidification approach, the passing speed of a desirable roll surface is about 6-20m/second, and, in the 2nd rapid solidification approach, is about 2-8m/second. Therefore, if it cools from 1200 degrees C to 800 degrees C when contact die length is 10mm and surface velocity is 6m/second, the cooling rate of a  $2.4 \times 10^5 \text{K/second}$  will be obtained.

[0056] In the case of 5mm contact die length, the minimum roll surface velocity demanded from the contact die length of cooling conditions and a molten metal, and a roll is equivalent to the conditions which cool between the temperature provinces of width-of-face 400K from 1200 degrees C to 800 degrees C in a minimum cooling rate  $5 \times 10^4 \text{K/second}$ . Since it is required that contact time should be 8m/second from a  $400\text{K}/5 \times 10^4 \text{K/second}$ , the minimum roll surface velocity becomes a second from a 5mm/8m/second in about 0.63m /. On the other hand, the highest roll peripheral velocity is equivalent to cooling between the temperature provinces of width-of-face 800K from 1200 degrees C to 400 degrees C in a  $5 \times 10^6 \text{K/second}$  by contact die length of 50mm, and becomes a second in 312.5m /similarly.

[0057] If roll surface velocity is slow, since it becomes easy to be influenced of molten metal supply rate fluctuation, it is not desirable. Moreover, if roll surface velocity is too quick, in disturbing molten metal \*\*\*\*\* and maintenance of a steady state becoming difficult, since it will be necessary to raise mechanical strength so that a roll may bear the centrifugal force by high-speed rotation, it is not desirable. Therefore, in order to realize stable industrial operation as mentioned

above, a second is usually desirable [ in the about 6-20m / // and 2nd quenching approach / in about 2-8m /] by the 1st quenching approach a second.

[0058] The thickness of the alloy obtained by the above-mentioned approach in the cooling rate  $5 \times 10^4 - 5 \times 10^6 \text{K/second}$  is usually within the limits of about 70-300 micrometers. Although the passing speed of the coagulation interface in rapid solidification changes with the heat transfer coefficients of a molten metal and a roll surface, it is 50mm/second - 100mm/second in extent by this alloy system. Therefore, if for example, contact length cools from 1200 degrees C to 800 degrees C with the surface velocity of 6m/second by 10mm, since contact time is 0.167m/second, the thickness of an alloy thin band will be about 80 micrometers - 170 micrometers.

[0059] Hereafter, the operation gestalt of this invention is explained, referring to a drawing.

[0060] With the [manufacture approach of raw material alloy and its powder] book operation gestalt, a raw material alloy is manufactured using the equipment shown in drawing 1 (a) and (b). In order to prevent oxidation of the raw material alloy containing the rare earth elements which are easy to oxidize, an alloy production process is performed in an inert gas ambient atmosphere. As inert gas, it is desirable to use rare gas, such as helium or an argon. In order that nitrogen may tend to react with rare earth elements, using as inert gas is not desirable.

[0061] The equipment of drawing 1 held the vacuum or the inert gas ambient atmosphere, and is equipped with the dissolution room 1 and the quenching room 2 of the raw material alloy which can adjust the pressure.

[0062] The dissolution room 1 is equipped with the fusion furnace 3 which dissolves the raw material 20 blended so that it might become a desired magnet alloy presentation at an elevated temperature, the hot-water-storing container 4 which has the tapping nozzle 5 at the pars basilaris ossis occipitalis, and the combination feeding equipment 8 for supplying a feed ingredient in a fusion furnace 3, controlling atmospheric penetration. The hot-water-storing container 4 stores the molten metal 21 of a raw material alloy, and has the heating apparatus (un-illustrating) which can maintain the tapping temperature on predetermined level.

[0063] The quenching room 2 is equipped with the rotation cooling roller 7 for carrying out the rapid solidification of the molten metal 21 which came out of the tapping nozzle 5, and the fracture machine 10 which crushes the raw material alloy in which rapid solidification was carried out by this in the quenching room 2. According to this equipment, it can

continue and be parallel and the dissolution, tapping, rapid solidification, fracture, etc. can be performed. Such equipment is indicated in detail by JP, 8-277403, A.

[0064] In this equipment, the ambient atmosphere in the dissolution room 1 and the quenching room 2 and its pressure are controlled by the predetermined range. Therefore, controlled atmosphere feed hopper 1b, 2b, 8b and 9b, and the flueing openings 1a, 2a, 8a, and 9a are formed in the suitable part of equipment.

[0065] A fusion furnace 3 can be tilted and pours in a molten metal 21 suitably in the hot-water-storing container 4 through a funnel 6. A molten metal 21 is heated by non-illustrated heating apparatus in the hot-water-storing container 4.

[0066] The tapping nozzle 5 of the hot-water-storing container 4 is arranged at the septum of the dissolution room 1 and the quenching room 2, and makes the front face of a cooling roller 7 in which it is located caudad flow down the molten metal 21 in the hot-water-storing container 4. The diameter of an orifice of the tapping nozzle 5 is 0.5-2.0mm. Although a molten metal 21 stops being able to flow easily in the inside of the tapping nozzle 5 when the viscosity of a molten metal 21 is large, \*\* which performs tapping of a molten metal 21 smoothly is made by forming the differential pressure of magnitude suitable between the dissolution room 1 and the quenching room 2.

[0067] The front face of a cooling roller 7 is covered for example, in the chrome plating layer, and the diameter of a cooling roller 7 is 300-500mm. The water-cooled capacity of a water cooler established in the cooling roller 7 is computed and adjusted according to the coagulation latent heat and the amount of tapping per unit time amount.

[0068] According to this equipment, the rapid solidification of a total of the 20kg raw material alloy can be carried out, for example in 20 - 40 minutes. In this way, before fracture, although the formed alloy is the alloy thin band (thickness: 70-150micrometer and width-of-face: 1.5-6mm) (alloy ribbon) 22, after being crushed by the alloy flake 23 with a die length of about 2-150mm with fracture equipment 10, they are collected by the recovery device section 9. In the example of equipment currently illustrated, the recovery device section 9 is equipped with the compressor 11, and a flake 23 can be compressed by it.

[0069] Next, the manufacture approach of the raw material alloy using the equipment of drawing 1 is explained.

[0070] First, a general formula produces the molten metal 21 of the alloy for nano composite magnets expressed with any of  $\text{Fe}_{100-x-y}\text{R}_x\text{B}_y$ ,  $\text{Fe}_{100-x-y-z}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z$ ,  $\text{Fe}_{100-x-y-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{Mu}_u$ , or  $\text{Fe}_{100-x-y-z-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z\text{Mu}_u$  they

are, and stores in the hot-water-storing container 4 of the dissolution room 1. Here, R, M, the presentation ratio x, the range of y, z, and u, etc. are as having mentioned above.

[0071] Next, tapping of this molten metal 21 is carried out on the water-cooled roll 7 from the tapping nozzle 5, and contact on the water-cooled roll 7 quenches it, and it is solidified. It is necessary to use the approach in which highly precise control of a cooling rate is possible as the rapid solidification approach, and the piece rolling method which is one of the melt quenching methods is used with this operation gestalt. Although it is also possible for rapid solidification to use the gas atomizing method in addition to this, since yield of the powder particle which the cooling rate was greatly dependent on powder particle size, changed, and passed through the suitable cooling rate is not raised according to this approach, to this invention, it is unsuitable.

[0072] Let a cooling rate be a  $5 \times 10^4 - 5 \times 10^6 \text{K/second}$  on the occasion of the cooling coagulation of a molten metal 21 with this operation gestalt. Only \*\*T 1 reduces the temperature of an alloy to low temperature with this cooling rate. Since the temperature of the alloy molten metal 21 before quenching is in the temperature (for example, 1200-1300 degrees C) near the melting point  $T_m$ , the temperature of an alloy falls to ( $T_m - **T1$ ) from  $T_m$  on a cooling roller 7. According to the experiment of an invention-in-this-application person, it is desirable that \*\*T1 is within the limits of 400-800 degrees C from a viewpoint of raising a final magnet property.

[0073] The time amount by which the molten metal 21 of an alloy is cooled with a cooling roller 7 is equivalent to time amount after the periphery surface alloys of the rotating cooling roller 7 contact until it separates, and, in the case of this operation gestalt, it is 0.5 - 2 ms. Between them, the temperature of an alloy falls and solidifies only \*\*T 2 further. Then, the solidified alloy separates from a cooling roller 7, and flies the inside of an inert atmosphere. As a result of heat's being taken by the controlled atmosphere while the alloy is flying with thin band-like one, the temperature falls to ( $T_m - **T1 - **T2$ ). Although \*\*T2 change with the size of equipment, or the pressures of a controlled atmosphere, they are about 100 degrees C or more than it.

[0074] With this operation gestalt, the temperature of the alloy thin band 22 performs a crushing process promptly within equipment in the phase set to ( $T_m - **T1 - **T2$ ), and produces the alloy flake 23 on that spot. Therefore, it is desirable to adjust so that the magnitude to which ( $T_m - **T1 - **T2$ ) becomes lower than the glass temperature  $T_g$  of an

alloy (\*\*T1+\*\*T2). It is because it will be in the condition that the alloy became soft and the fracture will become difficult, if it is  $\geq (T_m - **T1 - **T2) T_g$ . When performing fracture / grinding process of a coagulation alloy separately with other equipments, in order for alloy temperature to fall to room temperature extent, it is not necessary to take the magnitude of (\*\*T1+\*\*T2) into consideration.

[0075] In addition, as for the absolute pressure in the quenching room 2, it is desirable to set up within the limits of 2-30kPa, and it is still more desirable to set up within the limits of 3-10kPa. It is because the alloy thin band 22 which the cooling condition was equalized and was excellent in the shape of surface type will be obtained even if a possibility that a controlled atmosphere may be wound between a molten metal 21 and the front face of a roller 7 disappears and it makes the cooling rate of a molten metal 21 lower than before if it flows down a molten metal 21 on the cooling roller 7 in the state of such reduced pressure. On the other hand, when it flows down a molten metal 21 on the cooling roller which rotates with a late peripheral velocity like this operation gestalt in an ordinary pressure ambient atmosphere, there is a possibility that the shape of surface type of the alloy thin band 22 may deteriorate.

[0076] moreover, if it continues at a rapid solidification process and the crushing process of the coagulation alloy by shredding equipment is promptly performed like this operation gestalt, the quenching alloy breathed out from the cooling roller as a long alloy ribbon can be boiled comparatively, and it can collect in a compact in narrow space. If rapid solidification equipment and shredding equipment are made another configuration, it will be necessary to once contain it in the condition of having been bulky, using a quenching alloy as a long thin band.

[0077] If well-known mechanical grinding equipment grinds further the alloy flake crushed by fracture equipment, the alloy powder of magnitude suitable for a heat treatment process or a subsequent forming cycle is producible. With this operation gestalt, it grinds after performing coarse grinding of an alloy until it is set to about 850 micrometers or less with power mill equipment until grain size is set to about 150 micrometers or less with pin disc mill equipment.

[0078] The heat treatment approach performed to the above-mentioned raw material alloy powder is explained below to [the manufacture approach of nano composite magnet powder], referring to drawing 2 .

[0079] Drawing 2 shows the powder firing furnace equipment which used the hoop belt. This equipment equips the one direction with the hoop

belt 26 driven at a predetermined rate by rotation of the roll kneaders 24 and 25 supported pivotable with the body 28 and those roll kneaders 24 and 25. The powder of a raw material alloy is supplied to the raw material feed location A on the hoop belt 26, and is carried by the left in drawing. The powder supplied on the hoop belt 26 is leveled by \*\*\*\*\* 27, and powdered height is adjusted by it to below fixed level (for example, height of 2-4mm). Then, powder goes into the heating zone surrounded by the metal tube, and receives heat treatment for microcrystal-izing there. In the heating zone (for example, die length of 1100mm), it divides for example, into three zones, and the non-illustrated heater is arranged (the die length of one zone is 300mm). Powder will receive heat treatment, moving in the inside of a heating zone. In the latter part of a heating zone, the cooling zone C with a die length of 800mm exists, and powder is cooled by passing through the inside of the metal cylinder by which water cooling was carried out. The cooled powder is recovered by the non-illustrated recovery system with the lower left direction of the rotation roller 25.

[0080] According to this thermal treatment equipment, a heat treatment process is controllable by adjusting the passing speed of the hoop belt 26 to the die length of the given heating zone.

[0081] What is necessary is to part [ for temperature up rate/of 100-150 degrees C ] raise the heat treatment temperature of even 590-700 degrees C, and just to hold the condition for about 5 - 15 minutes as a heat treatment process, for example. Then, alloy temperature is reduced to room temperature level in a part for temperature fall rate/of 100-150 degrees C.

[0082] In addition, what is necessary is to lengthen the die length of a heating zone and just to carry out rotation peripheral velocity of the rotation rollers 24 and 25 early, while making large width of face of the hoop belt 26 and enlarging the powder amount of supply per unit length of the hoop belt 26, in order to increase the amount of processing powder of heat treatment. According to the alloy powder by this invention, since rapidly big crystallization heat of reaction is not generated on the occasion of heat treatment, the temperature control of the alloy powder in a heat treatment process is easy. Consequently, even if it increases the powder amount of supply, magnet powder with stable magnetic properties is producible.

[0083] The raw material powder which received heat treatment by the above-mentioned thermal treatment equipment is microcrystal-ized as mentioned above, and it can demonstrate now the property as a nano composite magnet. In this way, it is in a metallic glass condition

before heat treatment, and the raw material alloy powder in which the property as a hard magnetic material was not shown changes to the nano composite magnet alloy powder which was excellent in magnetic properties with heat treatment.

[0084] How to manufacture a magnet from the above-mentioned nano composite magnet alloy powder is explained below to [the magnetic manufacture approach].

[0085] First, a compound is produced by adding and kneading the binder and additive which become the nano composite magnet alloy powder obtained as mentioned above from an epoxy resin. Next, after carrying out press forming with shaping equipment with the shaping space of the request configuration of a party udo, a final bond magnet can be obtained through a heat hardening process, a washing process, a coating process, an inspection process, and a magnetization process.

[0086] Fabrication is not necessarily limited to above-mentioned compression molding, and is good also by well-known extrusion molding, injection molding, or rolling shaping. Magnet powder will be kneaded with brass tic resin and rubber according to the class of fabricating method to adopt.

[0087] In addition, when based on injection molding, high softening temperature resin can be used like PPS besides the polyimide (nylon) currently widely used as resin. This is because the magnet powder of this invention is formed from the low rare earth alloy, so a magnet property does not deteriorate even if it is hard to oxidize and performs injection molding at temperature high in comparison.

[0088] Moreover, since the magnet of this invention cannot oxidize easily, it does not have to carry out the coat of the final magnet front face by the resin film. It is also possible to manufacture the components which pressed the magnet powder and melting resin of this invention fit with injection molding in the slot of the components which follow, for example, have the slot of a complicated configuration, and were equipped with the magnet of a complicated configuration in one by it.

[0089] The operation gestalt of a [motor], next the motor equipped with the magnet which carried out in this way and was manufactured is explained.

[0090] The motor of this operation gestalt is an IPM (Inner Permanent Magnet) mold motor, and the bond magnet produced by the above-mentioned manufacture approach is used for it as a spring magnet of one apparatus Rota.

[0091] In addition, it cannot be overemphasized that the magnet of this



invention is used suitable for other motors and actuators of a class besides this kind of motor.

[0092] Below, the example and the example of a comparison of this invention are explained.

[0093] In [1st example] this example, absolute pressure performed the above-mentioned rapid solidification process in the argon atmosphere of 30 or less kPas. As a cooling roller, the roll made from a copper alloy (diameter: 350mm) covered in the chrome plating layer with a thickness of 5-15 micrometers was used. The rapid solidification of the molten metal of a raw material alloy was flowed down it and carried out on the periphery front face, rotating the roll made from a copper alloy with the peripheral velocity of 10m/second. When the temperature of a molten metal was measured with the emission pyrometer, it was 1300 degrees C. The molten metal dropped the diameter of 1.3-1.5mm by carrying out at the rate of per second 10-20g from the orifice.

[0094] The ratio (%) of the Bragg reflection reinforcement of the metastable phase Z to the presentation of the molten metal about each example and the highest reinforcement of a halo pattern is shown in Table 1. As shown in Table 1, "the ratio of Bragg reflection reinforcement" suited 5 - 200% of within the limits also about which example. In addition, in Table 1, the notation "Nd2.5+Pr1" indicated by the column of "R" means that each presentation ratio is 2.5 atoms % and one atom % including Nd and Pr as rare earth elements R.

[0095] Drawing 3 (a) shows the powder X diffraction pattern about the example of a number 2. the halo pattern which makes a background so that drawing 3 (a) may show -- 2 -- while the highest reinforcement is shown in  $\theta$  = about 43 degrees, a steep peak on the strength is observed in  $2\theta$  = 51.4 degrees. This steep peak on the strength is a Bragg scattering peak which appeared in the location equivalent to 0.179nm\*\*0.005nm crystal-face spacing. This Bragg scattering peak is based on a metastable phase Z. Otherwise, the diffraction line by the metastable phase Z is observed by the location equivalent to a 0.417nm\*\*0.005nm crystal-face spacing and 0.267nm\*\*0.005nm crystal-face spacing.

[0096] In addition, observation of the above-mentioned powder X diffraction pattern installed and performed the monochromator between the sample and Cu target, using Rigaku RINT2000 as a measuring device.

[0097] After grinding the raw material alloy of this example to powder with the particle size of 850 micrometers or less, it heat-treated to raw material alloy powder with the fine-particles firing furnace (for a trial: die length of 2m) of drawing 2 . Raw material alloy powder passed through the cooling zone C in 10 minutes, after passing through the

heating zone in 10 minutes. A heat treatment ambient atmosphere is argon gas, and supplied raw material alloy powder by the loading consistency of 0.6 g/cm<sup>2</sup> per unit area. The magnetic properties and the optimal heat treatment temperature at the time of setting throughput per unit time amount to 3kg are shown in Table 2.

[0098] The same process as an example was performed using the molten metal which has the presentation shown in the [example 1 of comparison] table 3.

[0099] The difference with an example is in the cooling rate of a molten metal, and carried out roll peripheral velocity in 20m/second in this example of a comparison. Other conditions are substantially [ as the conditions of an example ] the same. Table 3 shows that the ratio (%) of the Bragg reflection reinforcement of the metastable phase Z to the highest reinforcement of a halo pattern is less than 5%.

[0100] Drawing 3 (b) shows the powder X diffraction pattern about the example of a number 2. The Bragg scattering peak by the metastable phase Z was not clearly observed so that drawing 3 (b) might show.

[0101] The magnetic properties after the optimal heat treatment temperature about this example of a comparison and heat treatment are shown in Table 4. The thermal treatment equipment and the approach are the same as that of the case of an example. Coercive force is low as compared with an example, and Table 4 shows that the magnet property is inferior. This cause has the bad controllability of heat treatment, and is because desirable crystal growth is not realized.

[0102] In order to make a magnet property equivalent to the magnet property of an example discover, the powder throughput at the time of heat treatment needed to be reduced to 0.7kg per hour. Since the controllability of heat treatment is falling in the case of the example of a comparison, unless it lessens the amount of alloy powder and it is processed, a magnet alloy with a desired metal texture cannot be obtained. The example of a comparison is inferior in the throughput by the heat treatment process for magnet-izing, and this shows that it is not fit for mass production.

[0103] The same process as an example was performed using the molten metal which has the presentation shown in the [example 2 of comparison] table 5.

[0104] The difference with an example is in a cooling rate and the amount of flowing down of a molten metal. In this example of a comparison, roll peripheral velocity was carried out in 5m/second, and the molten metal was dropped at the rate of per second 20-30g. The powder throughput at the time of heat treatment could be 3kg per hour.

Other conditions are substantially [ as the conditions of an example ] the same.

[0105] The ratio (%) of the Bragg reflection reinforcement of the metastable phase Z to the highest reinforcement of a halo pattern and the ratio (%) of the reinforcement of the Bragg scattering (110) peak of the body center cube mold Fe are shown in Table 5. If a cooling rate is too slow as shown in Table 5, the ratio (%) of the Bragg reflection reinforcement of the metastable phase Z to the highest reinforcement of a halo pattern is over 200%.

[0106] Drawing 4 shows the powder X diffraction pattern about the example of a number 2. Although the Bragg scattering peak by the metastable phase Z is notably observed so that drawing 4 may show, the reinforcement of a halo pattern is falling remarkably.

[0107] About this example of a comparison, the magnetic properties and the optimal heat treatment temperature after heat treatment are shown in Table 5. The thermal treatment equipment and the approach are the same as that of the case of an example. Coercive force is low as compared with an example, and Table 6 shows that the magnet property is inferior.

[0108] Even if it changed the powder throughput at the time of heat treatment, a magnet property equivalent to the magnet property of an example was not able to be made to discover. This shows that it becomes impossible to acquire a desirable nano composite presentation when a cooling rate is too slow.

[0109] The example by the 2nd approach mentioned above is explained below the [2nd example].

[0110] In this example, the relative position of a nozzle orifice and a roll kneader was changed in the equipment of drawing 1. More, the molten metal was concentrated through \*\* from the 45 slanting upper part on the basis of the core of a cooling roller 7, and the rapid solidification of the molten metal was carried out to the detail, controlling so that the depth of a molten metal is set to 5mm - 8mm in the space (width of face of 10mm) of the upper part release surrounded by \*\* and the roll peripheral face. In addition, the presentation of the raw material alloy used by this example is the same as that of what was indicated in Table 1 and 3.

[0111] The alloy thin band which contacted the roll surface and was solidified was pulled out up with rotation of a roll 7, in the neighborhood which passed the summit of a roll 7, separated from the roll 7 and fell caudad. Then, through the sliding way, the alloy thin band was introduced into the grinder and ground. The roll peripheral velocity at this time was 5m/second. Molten metal temperature was 1200

degrees C - 1280 degrees C in the location of a basin, and the ambient pressure force at the time of cooling was 40kPa-50kPa. The temperature of an alloy thin band measured the infrared reinforcement of 3-5 micrometers of wavelength bands, assumed iron black body radiation, and presumed it from the Stephen Boltzmann distribution. In this way, the presumed temperature of the obtained alloy thin band had already fallen to about 800 degrees C - 900 degrees C immediately after pulling out from a basin. Moreover, the thickness of the obtained alloy thin band was 100 micrometers - 170 micrometers. The contact die length of a molten metal and a roll estimated the quenching rate at the time of coagulation to be a  $1.3 \times 10^6 \text{K/second}$  -  $3.4 \times 10^6 \text{K/second}$  as 1.4 times ( $1/45 \cos(\theta)$ ) of the depth of a molten bath.

[0112] Since cooling of it was carried out still more promptly after being able to pull up a molten metal from a basin, the alloy thin band temperature in the time of exfoliating from a roll 7 was falling to 400-500 degrees C. Since the diameter of a roll of the equipment used by this example was 350mm, time amount after a molten metal contacts a roll until it separates was equivalent to the time amount which a roll rotates  $1/8$ , and was about 20m/second. Therefore, the cooling rate of the average on the roll of a molten metal estimates that it was a  $3.6 \times 10^4 \text{K/second}$  -  $4.5 \times 10^4 \text{K/second}$ .

[0113] The vitrification transition temperature of these alloys is about 550 degrees C - 580 degrees C at most, even when thermal analysis is performed on the conditions which heat an amorphous alloy by part for 20-degree-C/and glass transition is observed below at the crystallization temperature (about 590-600 degrees C) of Fe<sub>3</sub>B. On the other hand, when glass transition is not observed by such thermal analysis, vitrification transition temperature will be beyond crystallization temperature. Since the alloy thin band temperature at the time of an alloy thin band separating from a roll 7 was 400-500 degrees C in the case of this example, after quenching an alloy thin band below at vitrification transition temperature, it turns out that the roll 7 was left.

[0114] Thus, as a result of measuring the obtained alloy thin band using Cu-K alpha rays with X-ray diffractometer, the diffraction pattern shown in drawing 5 was obtained. It turned out that it is what can carry out indexing as a Fe<sub>23</sub> B<sub>6</sub> phase as the diffraction line in this diffraction pattern was shown all over drawing.

[0115] When this raw material was heat-treated by the amount of supply of 3 kg/h using the heat treating furnace for evaluation shown in drawing 2, the magnet property shown in Table 7 in the heat treatment

temperature (laying temperature of a furnace) shown in Table 7, respectively was acquired. When the example 1 of a comparison and this example which were heat-treated by the amount of supply of 0.7 kg/h are compared about the alloy of the same presentation, it turns out that the magnetic properties of this example are relatively high. In other words, the heat treatment process of this example has a high throughput. In addition, the number of the leftmost column of Table 7 is equivalent to the number shown in Table 1 and 3, and the same number shows the raw material alloy of the same presentation.

[0116] The example by the 3rd approach mentioned above is explained below the [3rd example].

[0117] As the distance between rolls was set to 160 micrometers, the relative configuration of the quenching roll made from carbon steel of the pair of 150mm of diameters of a roll was carried out, and hard flow was made to rotate a roll mutually at the same rate so that a roll surface may move caudad in the clearance location during a roll. This example also carried out roll surface velocity in 5m/second. The weir of refractories is made through the refractories felt on a roll side face, and it was made for a molten metal not to leak in the direction of a side face. Thus, it was made to flow down a molten metal toward the clearance between rolls through a quartz nozzle orifice from the upper part, and the basin was formed in the clearance space during a roll. The basin depth presumed based on the width of face (as parallel as roll spacing) of a basin was about 10mm. The molten metal was caudad pulled out from the clearance during a roll, and the continuous quenching alloy thin band was formed. 1300 degrees C and the alloy thin band temperature of the molten metal temperature before quenching were about 800 degrees C directly under the roll. Therefore, the average cooling rate was estimated to be an abbreviation  $2.5 \times 10^5 \text{K/second}$ . In this example, cooling of the thin band was further carried out according to the cooling argon gas stream, and thin band temperature was reduced at 500 degrees C or less.

[0118] When this alloy was heat-treated by the amount of supply of 3kg/hour using the heat treating furnace for evaluation shown in drawing 2, the magnet property shown in Table 8 in the optimal heat treatment temperature (laying temperature of a furnace) shown in Table 8, respectively was acquired. When the example 1 of a comparison and this example which were heat-treated by the amount of supply of 0.7kg/hour are compared about the alloy of the same presentation, it turns out that the magnetic properties of this example are relatively high. In other words, the heat treatment process of this example has a high throughput.

[0119]

[Table 1]

実施例

番号	組成					ハローパターンピークに対する ZのX線回折強度比(%)
	Fe	B	R	M	Co	
1	79.5	17	Nd3	Si1		150
2	74.3	18.5	Nd3.5	Cr0.7	3	120
3	74	20	Nd2.5+Pr1	Cu0.5+Nb1	1	120
4	75.5	18.5	Nd4	Cr2	0	70
5	74	18	Nd2+Pr2	Ga1	3	60
6	72	17.5	Nd4.5	Ag0.5+Cu1	4.5	40
7	76	20	Nd2.5+Pr1	Zr0.5	2	130
8	66	18.5	Nd5.5	Cr5	5	10
9	71.5	18.5	Nd5	V5	0	20
10	76.5	18	Pr2+Tb1	Al0.5	2	130
11	74.4	18.5	Nd3+Dy1	Mo0.1	3	100
12	71.4	19	Pr3+Ho0.5	Hf0.1	6	110
13	77.5	18	Pr3+Sm0.5	Ta1	2	110
14	74.5	17	Nd4	Au0.5+Pt1	3	80
15	78	18	Nd4	none	0	120

[0120]

[Table 2]

実施例の合金を用いて作製したナノコンポジット磁石の熱処理温度と磁気特性

番号	最適熱処理温度 (°C)	磁気特性(フレーク状試料)		
		HcJ(kA/m)	Br(T)	(BH)max(kJ/m <sup>3</sup> )
1	600	286	1.26	124
2	595	288	1.14	126
3	650	228	1.22	122
4	610	322	1.16	102
5	640	346	1.18	133
6	650	310	1.15	128
7	660	276	0.93	96
8	620	526	0.86	86
9	625	410	0.85	79
10	640	376	1.08	112
11	680	358	1.08	119
12	675	333	0.96	102
13	690	250	1.12	98
14	595	344	1.12	130
15	605	240	1.28	108

[0121]

[Table 3]

比較例 1

番号	組成					ハローパターンピークに対する ZのX線回折強度比(%)
	Fe	B	R	M	Co	
16	79.5	17	Nd3	Si1		4
17	74.3	18.5	Nd3.5	Cr0.7	3	3
18	74	20	Nd2.5+Pr1	Cu0.5+Nb1	1	4
19	75.5	18.5	Nd4	Cr2	0	<2
20	74	18	Nd2+Pr2	Ga1	3	<2
21	72	17.5	Nd4.5	Ag0.5+Cu1	4.5	<2
22	76	20	Nd2.5+Pr1	Zr0.5	2	4
23	66	18.5	Nd5.5	Cr5	5	<2
24	71.5	18.5	Nd5	V5	0	<2
25	76.5	18	Pr2+Tb1	Al0.5	2	<2
26	74.4	18.5	Nd3+Dy1	Mo0.1	3	<2
27	71.4	19	Pr3+Ho0.5	Hf0.1	6	3
28	77.5	18	Pr3+Sm0.5	Ta1	2	4
29	74.5	17	Nd4	Au0.5+Pt1	3	<2
30	78	18	Nd4	none	0	4

[0122]

[Table 4]



比較例1の合金を用いて作製したナノコンジット磁石の熱処理温度と磁気特性

番号	最適熱処理温度 (°C)	磁気特性(フレーク状試料)		
		HcJ(kA/m)	Br(T)	(BH) <sub>max</sub> (kJ/m <sup>3</sup> )
16	620	222	1.16	92
17	610	221	0.92	89
18	680	202	1.09	98
19	640	263	1.03	92
20	660	296	1.04	103
21	670	290	0.98	98
22	670	202	0.85	76
23	640	446	0.81	68
24	635	388	0.80	67
25	650	316	0.99	92
26	680	318	1.01	101
27	685	298	0.92	82
28	695	223	1.01	78
29	620	304	1.03	104
30	660	221	1.15	94

[0123]

[Table 5]

比較例2

番号	組成					ハローパターンピークに対する X線回折強度比	
	Fe	B	R	M	Co	Z(%)	Fe(%)
31	79.5	17	Nd3	Si1		550	<4
32	74.3	18.5	Nd3.5	Cr0.7	3	900	250
33	74	20	Nd2.5+Pr1	Cu0.5+Nb1	1	550	8
34	75.5	18.5	Nd4	Cr2	0	470	6
35	74	18	Nd2+Pr2	Ga1	3	560	120
36	72	17.5	Nd4.5	Ag0.5+Cu1	4.5	310	10
37	76	20	Nd2.5+Pr1	Zr0.5	2	340	15
38	66	18.5	Nd5.5	Cr5	5	300	20
39	71.5	18.5	Nd5	V5	0	290	90
40	76.5	18	Pr2+Tb1	Al0.5	2	330	20
41	74.4	18.5	Nd3+Dy1	Mo0.1	3	250	<4
42	71.4	19	Pr3+Ho0.5	Hf0.1	6	320	10
43	77.5	18	Pr3+Sm0.5	Ta1	2	340	33
44	74.5	17	Nd4	Au0.5+Pt1	3	280	130
45	78	18	Nd4	none	0	230	80

[0124]

[Table 6]

比較例2の合金を用いて作製したナノコンポジット磁石の熱処理温度と磁気特性

番号	最適熱処理温度 (°C)	磁気特性(フレーク状試料)		
		H <sub>co</sub> (kA/m)	Br(T)	(BH) <sub>max</sub> (kJ/m <sup>3</sup> )
31	620	202	1.07	88
32	610	195	0.90	78
33	680	199	0.99	91
34	640	203	0.71	72
35	660	246	0.92	84
36	670	280	0.96	94
37	670	189	0.75	56
38	640	402	0.78	58
39	635	378	0.77	58
40	650	278	0.91	68
41	680	228	0.89	75
42	685	228	0.90	77
43	695	201	0.92	58
44	620	248	0.84	78
45	675	198	0.98	82

[0125]

[Table 7]

番号	最適熱処理温度	磁気特性 (フレーク状試料)		
	(°C)	HcJ (kA/m)	Br (T)	(BH)max(kJ/m <sup>3</sup> )
1	660	280	1.24	120
2	640	282	1.11	121
3	690	230	1.23	119
4	680	330	1.15	98
5	690	340	1.16	128
6	690	310	1.12	122
7	690	272	0.96	93
8	660	528	0.84	82
9	680	402	0.86	80
10	670	368	1.08	112
11	690	356	1.07	110
12	690	324	0.95	112
13	710	240	1.11	95
14	650	344	1.13	124
15	640	236	1.28	105

[0126]

[Table 8]

番号	最適熱処理温度	磁気特性 (フレーク状試料)		
	(°C)	HcJ (kA/m)	Br (T)	(BH)max(kJ/m <sup>3</sup> )
1	660	270	1.20	110
2	640	273	1.03	101
3	690	212	1.17	111
4	680	330	1.15	98
5	690	330	1.12	118
15	640	230	1.21	98

[0127] The reason for limitation of an alloy presentation is explained to the [reason for presentation limitation] last.

[0128] Rare earth elements R are elements indispensable to R<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B which is a hard magnetism phase. R in this invention contains the element of either Pr or Nd and both more than 90 atom %, and contains the lanthanide of others [ remainder ], or the element more than a kind of Y less than 10% 0% or more. The element of either Pr and Nd is indispensable in order to generate R<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B with a uniaxial-crystal magnetic anisotropy. Rare earth elements other than Pr and Nd are suitably chosen as arbitration. Since there is too little effectiveness of coercive force generating when less than 2 atom %, the presentation ratio of R is not desirable. On the other hand, if the presentation ratio of R exceeds 6 atom %, since Fe<sub>3</sub> B phase and Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub> B phase will not be generated but an alpha-Fe phase will turn into the main phase, coercive force will decline remarkably. From the above thing, it is desirable about the presentation ratio x of R that it is 2<=x<=6.

[0129] B is an element indispensable for both R<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B which is Fe<sub>3</sub>B and the hard magnetism phase which are a software magnetism phase. Since necessary coercive force will not be demonstrated if the presentation ratio y of B separates from the range of 16 - 20 atom %, about the presentation ratio y of B, it is desirable that it is 16<=y<=20. Furthermore, if B separates from this presentation range, since the melting point will rise, it will be necessary to raise a melting temperature and the incubation temperature of a hot-water-storing container and and amorphous generation ability will also fall, a desired quenching alloy organization becomes is hard to be obtained.

[0130] By raising Curie temperature, Co decreases the temperature-change dependency of magnetic properties, consequently has the function to

stabilize magnetic properties. Moreover, there is also a function to improve the viscosity of an alloy molten metal, and it contributes also to stabilization of a molten metal flowing-down rate. If the addition rate of Co is less than 0.02 atom %, the above-mentioned function will not fully be demonstrated, but if 7 atom % is exceeded, a magnetization property will begin to fall. When acquiring the effectiveness of this invention, addition of Co is not [ that what is necessary is just to perform addition of Co to demonstrate these functions ] necessarily indispensable. When adding Co, it is desirable that  $0.2 \leq z \leq 7$  is materialized about the presentation ratio  $z$  from an above-mentioned reason.

[0131] M is added to increase coercive force as much as possible. If the addition rate of M is less than 0.01 atom %, the increment in coercive force will not fully be observed, but if the addition rate of M exceeds 7 atom %, magnetization will fall. Therefore, when adding M, it is desirable about the presentation ratio  $u$  that  $0.1 \leq z \leq 7$  is materialized. In M, Cr demonstrates the effectiveness of corrosion-resistant improvement besides the increment in coercive force. Moreover, Cu, Au, and Ag are effective in expanding the proper temperature requirement in heat-of-crystallization down stream processing.

[0132]

[Effect of the Invention] According to the raw material alloy for nano composite magnets by this invention, since crystallization of Fe<sub>3</sub>B advances by atomic diffusion of the ultrashort range, crystallization of Fe<sub>3</sub>B becomes possible at low temperature comparatively. Moreover, since the temperature requirement where crystallization of Fe<sub>3</sub>B advances shifts from the temperature requirement where crystallization of Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B advances, each crystallization takes place separately in time at the time of heat treatment. For this reason, microcrystallization can be performed with a sufficient controllability, without crystallization heat of reaction's distributing to a large temperature requirement, and emitting big crystallization heat of reaction at once. Consequently, the raw material powder throughput in a heat treatment process can be raised, without degrading a magnet property.

[0133] Moreover, since a crystalline nucleus required for crystallization of Fe<sub>3</sub>B exists by high density in a raw material alloy, by magnetized heat treatment, a detailed and uniform metal texture can be formed and the manifestation of a high magnet property is enabled.

[0134] According to the manufacture approach of the raw material alloy for nano composite magnets of this invention, it becomes possible to control the cooling process for alloy formation, using the Bragg

reflection peak in the X diffraction of an alloy as an index. For this reason, optimizing a cooling rate or managing become easy, it is stabilized and the raw material alloy for the nano composite magnet excellent in the magnet property can be manufactured now.

[0135] According to the manufacture approach of the nano composite magnet powder of this invention, since a detailed and uniform metal texture can be formed with a sufficient controllability by magnet-ized heat treatment, it becomes possible to offer the magnet excellent in the magnet property by the high throughput.

[0136] Since the outstanding magnet property is demonstrated according to the nano composite magnet of this invention, the property of a motor, an actuator, etc. can be raised at low cost.

---

[Translation done.]

\* NOTICES \*

**JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.**

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

#### DESCRIPTION OF DRAWINGS

---

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] (a) is the sectional view showing the whole equipment example of a configuration used for the approach of manufacturing the raw material alloy for nano composite magnets by this invention, and (b) is an enlarged drawing of a part with which rapid solidification is performed.

[Drawing 2] It is the sectional view showing the example of the thermal treatment equipment used for the approach of manufacturing the nano composite magnet by this invention.

[Drawing 3] (a) is a graph which shows the X diffraction pattern of the 1st example, and (b) is a graph which shows the X diffraction pattern of the example 1 of a comparison.

[Drawing 4] It is the graph which shows the X diffraction pattern of the example 2 of a comparison.

[Drawing 5] It is the graph which shows the X diffraction pattern of the 2nd example.

[Description of Notations]

1b, 2b, 8b and 9b Controlled atmosphere feed hopper

1a, 2a, 8a, and 9a Flueing opening

1 Dissolution Room

2 Quenching Room

3 Fusion Furnace

4 Hot-Water-Storing Container

5 Tapping Nozzle

6 Funnel

7 Rotation Cooling Roller

10 Fracture Machine 10

11 Compressor

21 Molten Metal

22 Alloy Thin Band

23 Alloy Flake

28 Body

24 Roll Kneader

25 Roll Kneader

26 Hoop Belt

27 \*\*\*\*\*

---

[Translation done.]

\* NOTICES \*

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.

3. In the drawings, any words are not translated.

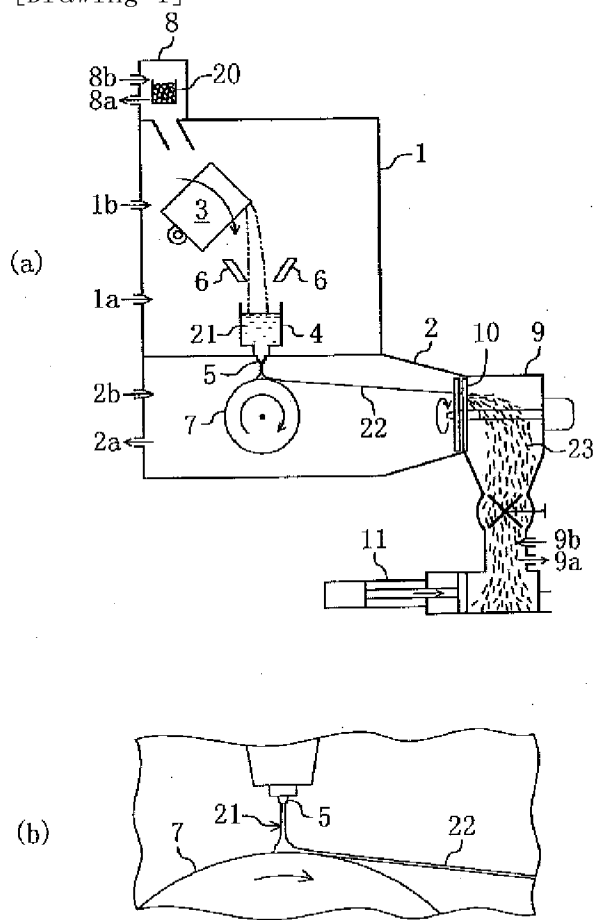
---

DRAWINGS

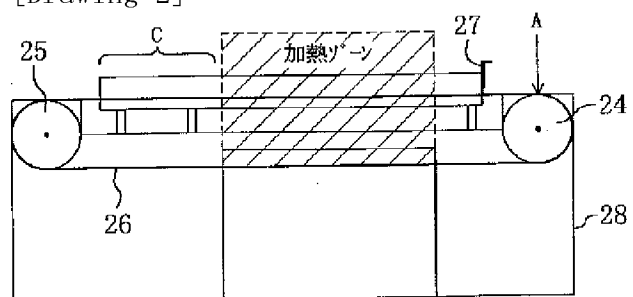
---



[Drawing 1]

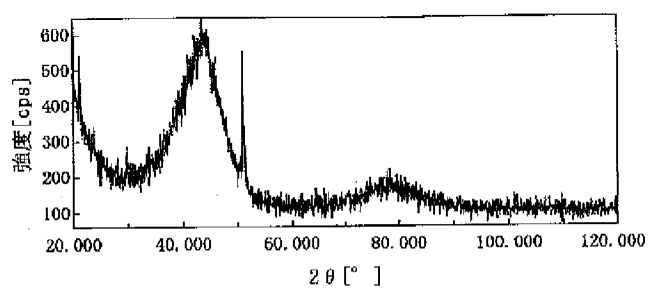


[Drawing 2]

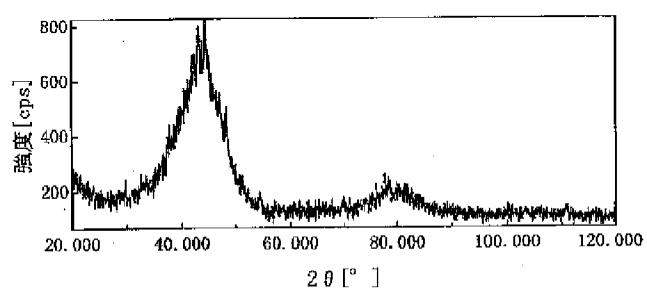


[Drawing 3]

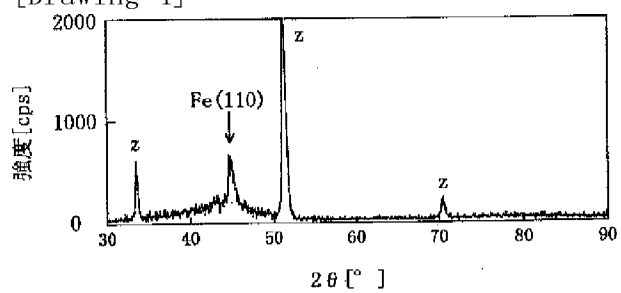
(a)



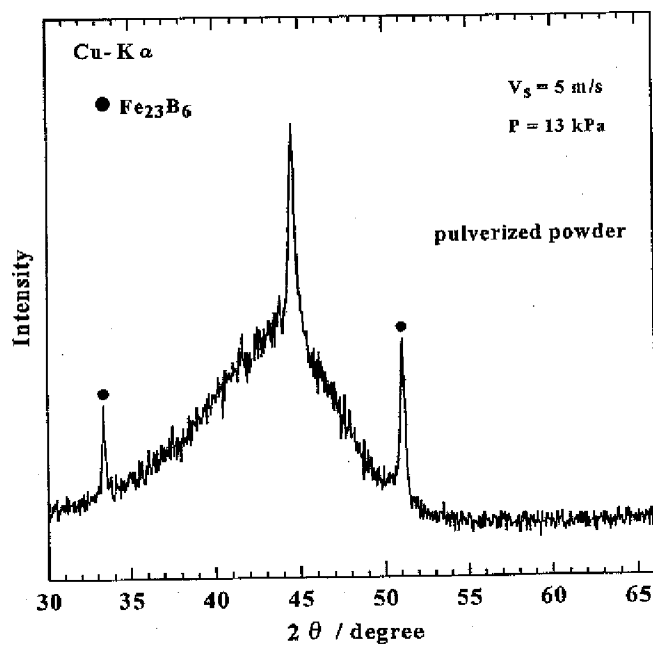
(b)



[Drawing 4]



[Drawing 5]



---

[Translation done.]

(19)日本国特許庁 (J P)

## (12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2000-234137

(P2000-234137A)

(43)公開日 平成12年8月29日(2000.8.29)

(51)Int.Cl.<sup>7</sup>

識別記号

F I

ターミナル\*(参考)

C 2 2 C 33/02

C 2 2 C 33/02

H 4 K 0 1 8

B 2 2 F 1/00

B 2 2 F 1/00

Y 5 E 0 4 0

3/00

C 2 2 C 38/00

3 0 3 D

C 2 2 C 38/00

3 0 3

B 2 2 F 3/00

F

H 0 1 F 1/053

H 0 1 F 1/04

H

審査請求 未請求 請求項の数11 書面 (全 22 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号

特願平11-291439

(22)出願日

平成11年9月6日(1999.9.6)

(31)優先権主張番号

特願平10-346700

(32)優先日

平成10年12月7日(1998.12.7)

(33)優先権主張国

日本 (J P)

(71)出願人 000183417

住友特殊金属株式会社

大阪府大阪市中央区北浜4丁目7番19号

(72)発明者 広沢 哲

大阪府三島郡島本町江川2丁目15番17号

住友特殊金属株式会社山崎製作所内

(72)発明者 金清 裕和

大阪府三島郡島本町江川2丁目15番17号

住友特殊金属株式会社山崎製作所内

(74)代理人 100101683

弁理士 奥田 誠司

最終頁に続く

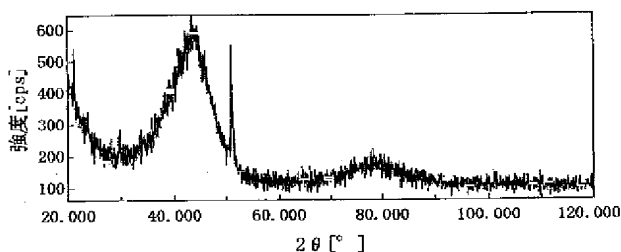
(54)【発明の名称】 ナノコンポジット磁石用原料合金、その粉末および製造方法、ならびにナノコンポジット磁石粉末および磁石の製造方法

(57)【要約】 (修正有)

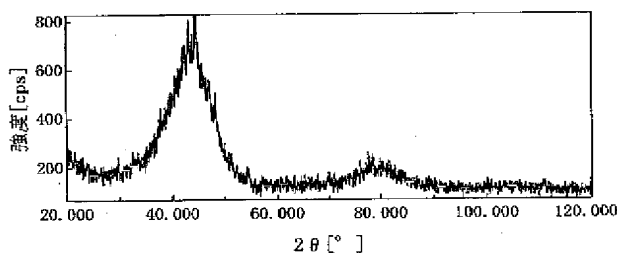
【課題】 結晶化反応熱を少なくし、それによって微細かつ均質な金属組織を持った磁石粉末を再現性良く効率的に製造するのに適したナノコンポジット磁石用原料合金(粉末)およびその製造方法を提供する。

【解決手段】 一般式が $Fe_{100-x-y}R_xB_y$ 、 $Fe_{100-x-y-z}R_xB_yCo_z$ 、 $Fe_{100-x-y-u}R_xB_yM_u$ 、または $Fe_{100-x-y-z-u}R_xB_yCo_zM_u$ で表されるナノコンポジット磁石用原料合金である。RはPrおよびNdの一方または両方の元素を90原子%以上含有し、残部が他のランタン系列元素またはYの一種以上の元素を0%以上10%未満含有する希土類元素であり、MはAl、Si、Ti、V、Cr、Mn、Ni、Cu、Ga、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、W、Pt、Pb、AuおよびAgからなる群から選択された一種以上の元素である。

(a)



(b)



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 一般式が  $\text{Fe}_{100-x-y}\text{R}_x\text{B}_y$ 、 $\text{Fe}_{100-x-y-z}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z$ 、 $\text{Fe}_{100-x-y-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{M}_u$ 、または  $\text{Fe}_{100-x-y-z-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z\text{M}_u$  で表されるナノコンボジット磁石用原料合金であって、

RはPrおよびNdの一方または両方の元素を90原子%以上含有し、残部が他のランタン系列元素またはYの一種以上の元素を0%以上10%未満含有する希土類元素であり、

MはAl、Si、Ti、V、Cr、Mn、Ni、Cu、Ga、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、W、Pt、Pb、AuおよびAgからなる群から選択された一種以上の元素であり、

組成比x、y、zおよびuが、

$$2 \leq x \leq 6、$$

$$16 \leq y \leq 20、$$

$$0.2 \leq z \leq 7、$$

$$0.01 \leq u \leq 7$$

を満足し、しかも、

X線回折におけるブラッグ反射ピークが  $0.179\text{ nm} \pm 0.005\text{ nm}$  の結晶面間隔に相当する位置にある準安定相Zを含有し、前記ブラッグ反射ピークの強度がハローパターンの最高強度の5%以上200%未満であり、かつ、

体心立方型Feの(110)ブラッグ散乱ピークの強度が前記ハローパターンの最高強度の5%未満であるナノコンボジット磁石用原料合金。

【請求項2】 一般式が  $\text{Fe}_{100-x-y}\text{R}_x\text{B}_y$ 、 $\text{Fe}_{100-x-y-z}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z$ 、 $\text{Fe}_{100-x-y-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{M}_u$ 、または  $\text{Fe}_{100-x-y-z-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z\text{M}_u$  で表されるナノコンボジット磁石用原料合金粉末であって、

RはPrおよびNdの一方または両方の元素を90原子%以上含有し、残部が他のランタン系列元素またはYの一種以上の元素を0%以上10%未満含有する希土類元素であり、

MはAl、Si、Ti、V、Cr、Mn、Ni、Cu、Ga、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、W、Pt、Pb、AuおよびAgからなる群から選択された一種以上の元素であり、

組成比x、y、zおよびuが、

$$2 \leq x \leq 6、$$

$$16 \leq y \leq 20、$$

$$0.2 \leq z \leq 7、$$

$$0.01 \leq u \leq 7$$

を満足し、しかも、

X線回折におけるブラッグ反射ピークが  $0.179\text{ nm} \pm 0.005\text{ nm}$  の結晶面間隔に相当する位置にある準安定相Zを含有し、前記ブラッグ反射ピークの強度がハ

ローパターンの最高強度の5%以上200%未満であり、かつ、

体心立方型Feの(110)ブラッグ散乱ピークの強度が前記ハローパターンの最高強度の5%未満であるナノコンボジット磁石用原料合金粉末。

【請求項3】 一般式が  $\text{Fe}_{100-x-y}\text{R}_x\text{B}_y$ 、 $\text{Fe}_{100-x-y-z}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z$ 、 $\text{Fe}_{100-x-y-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{M}_u$ 、または  $\text{Fe}_{100-x-y-z-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z\text{M}_u$  で表されるナノコンボジット磁石用原料合金であって、RはPrおよびNdの一方または両方の元素を90原子%以上含有し、残部が他のランタン系列元素またはYの一種以上の元素を0%以上10%未満含有する希土類元素であり、

MはAl、Si、Ti、V、Cr、Mn、Ni、Cu、Ga、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、W、Pt、Pb、AuおよびAgからなる群から選択された一種以上の元素であり、組成比x、y、zおよびuが、

$$2 \leq x \leq 6、16 \leq y \leq 20、0.2 \leq z \leq 7、および 0.01 \leq u \leq 7$$

を満足するナノコンボジット磁石用原料合金を製造する方法において、

前記原料合金の溶湯を形成する工程と、

前記溶湯を急冷凝固させる工程と、

を包含し、

前記急冷凝固工程に際して前記合金の冷却速度を調整することによって、X線回折におけるブラッグ反射ピークが  $0.179\text{ nm} \pm 0.005\text{ nm}$  の結晶面間隔に相当する位置にある準安定相Zを凝固後の原料合金が含有し、しかも、前記ブラッグ反射ピークの強度がハローパターンの最高強度の5%以上200%未満であり、かつ、体心立方型Feの(110)ブラッグ散乱ピークの強度が前記ハローパターンの最高強度の5%未満にすることを特徴とするナノコンボジット磁石用原料合金の製造方法。

【請求項4】 前記急冷凝固された原料合金から粉末を作製する工程を更に包含する請求項3に記載のナノコンボジット磁石用原料合金の製造方法。

【請求項5】 前記急冷凝固工程において、前記合金の冷却速度を  $5 \times 10^4 \sim 5 \times 10^6\text{ K/秒}$  とし、急冷前の合金の温度  $T_m$  から  $400 \sim 800^\circ\text{C}$  だけ低い温度に合金の温度を低下させる請求項3に記載のナノコンボジット磁石用原料合金の製造方法。

【請求項6】 一般式が  $\text{Fe}_{100-x-y}\text{R}_x\text{B}_y$ 、 $\text{Fe}_{100-x-y-z}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z$ 、 $\text{Fe}_{100-x-y-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{M}_u$ 、または  $\text{Fe}_{100-x-y-z-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z\text{M}_u$  で表されるナノコンボジット磁石用合金であって、RはPrおよびNdの一方または両方の元素を90原子%以上含有し、

残部が他のランタン系列元素またはYの一種以上の元素を0%以上10%未満含有する希土類元素であり、MはAl、Si、Ti、V、Cr、Mn、Ni、Cu、G

a、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、W、Pt、Pb、AuおよびAgからなる群から選択された一種以上の元素であり、組成比 $x$ 、 $y$ 、 $z$ および $u$ が、 $2 \leq x \leq 6$ 、 $16 \leq y \leq 20$ 、 $0.2 \leq z \leq 7$ 、および $0.01 \leq u \leq 7$ を満足し、しかも、X線回折におけるブラッグ反射ピークが $0.179 \text{ nm} \pm 0.005 \text{ nm}$ の結晶面間隔に相当する位置にある準安定相Zを含有し、前記ブラッグ反射ピークの強度がハローパターンの最高強度の5%以上200%未満であり、かつ、体心立方型Feの(110)ブラッグ散乱ピークの強度が前記ハローパターンの最高強度の5%未満であるナノコンボジット磁石用原料合金の粉末を用意する工程と、  
前記ナノコンボジット磁石用原料合金の粉末に対して熱処理を施し、それによって、 $\text{Fe}_3\text{B}$ 化合物およびFe-R-B系化合物の結晶化を実行する工程と、  
を包含するナノコンボジット磁石粉末の製造方法。

【請求項7】 前記ナノコンボジット磁石用原料合金の粉末を用意する工程は、  
前記原料合金の溶湯を形成する工程と、  
前記溶湯を急冷凝固させる工程と、  
前記急冷凝固された原料合金を破碎する工程と、  
前記原料合金を粉砕する工程と、を包含し、  
前記急冷凝固工程において、前記合金の冷却速度を $5 \times 10^4 \sim 5 \times 10^6 \text{ K/秒}$ とし、急冷前の合金の温度 $T_m$ から $400 \sim 800^\circ\text{C}$ だけ低い温度に合金の温度を低下させることを特徴とする請求項6に記載のナノコンボジット磁石粉末の製造方法。

【請求項8】 一般式が $\text{Fe}_{100-x-y}\text{R}_x\text{B}_y$ 、 $\text{Fe}_{100-x-y-z}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z$ 、 $\text{Fe}_{100-x-y-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{M}_u$ 、または $\text{Fe}_{100-x-y-z-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z\text{M}_u$ で表されるナノコンボジット磁石用合金であって、RはPrおよびNdの一方または両方の元素を90原子%以上含有し、残部が他のランタン系列元素またはYの一種以上の元素を0%以上10%未満含有する希土類元素であり、MはAl、Si、Ti、V、Cr、Mn、Ni、Cu、Ga、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、W、Pt、Pb、AuおよびAgからなる群から選択された一種以上の元素であり、組成比 $x$ 、 $y$ 、 $z$ および $u$ が、 $2 \leq x \leq 6$ 、 $16 \leq y \leq 20$ 、 $0.2 \leq z \leq 7$ 、 $0.01 \leq u \leq 7$ を満足し、しかも、X線回折におけるブラッグ反射ピークが $0.179 \text{ nm} \pm 0.005 \text{ nm}$ の結晶面間隔に相当する位置にある準安定相Zを含有し、前記ブラッグ反射ピークの強度がハローパターンの最高強度の5%以上200%未満であり、かつ、体心立方型Feの(110)ブラッグ散乱ピークの強度が前記ハローパターンの最高強度の5%未満であるナノコンボジット磁石用原料合金の粉末を用意する工程と、  
前記ナノコンボジット磁石用原料合金の粉末に対して熱処理を施し、それによって、 $\text{Fe}_3\text{B}$ 化合物およびFe

-R-B系化合物の結晶化を実行する工程と、  
前記熱処理後の原料合金の粉末を用いて成形体を形成する工程と、

を包含するナノコンボジット磁石の製造方法。

【請求項9】 前記ナノコンボジット磁石用原料合金の粉末を用意する工程は、  
前記原料合金の溶湯を形成する工程と、  
前記溶湯を急冷凝固させる工程と、  
前記急冷凝固された原料合金を破碎する工程と、  
前記原料合金を粉砕する工程と、を包含し、  
前記急冷凝固工程において、前記合金の冷却速度を $5 \times 10^4 \sim 5 \times 10^6 \text{ K/秒}$ とし、急冷前の合金の温度 $T_m$ から $400 \sim 800^\circ\text{C}$ だけ低い温度に合金の温度を低下させることを特徴とする請求項8に記載のナノコンボジット磁石の製造方法。

【請求項10】 前記成形体を形成する工程は、前記熱処理後の原料合金の粉末を用いてボンド磁石を作製する工程を含む請求項8または9に記載のナノコンボジット磁石の製造方法。

【請求項11】 請求項8、9または10に記載のナノコンボジット磁石の製造方法によって製造されたナノコンボジット磁石を備えたモータ。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、 $\text{Fe}_3\text{B}$ 化合物の微結晶およびFe-R-B系化合物の微結晶が混在したナノコンボジット磁石の製造方法に関する。特に、ナノコンボジット磁石を製造するための原料合金およびその粉末、原料合金の製造方法、ならびにナノコンボジット磁石粉末やナノコンボジット磁石の製造方法に関する。また、本発明はナノコンボジット磁石を備えたモータにも関する。

【0002】

【従来の技術】 $\text{Fe}_3\text{B}/\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 系ナノコンボジット磁石は、ソフト磁性相である $\text{Fe}_3\text{B}$ 微結晶とハード磁性相である $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 微結晶が均一に分布し、交換相互作用によって両者が磁氣的に結合した磁石である。これらの微結晶はナノメートル(nm)オーダーのサイズを持ち、両微結晶相が複合化した組織(ナノコンボジット組織)を構成していることから、「ナノコンボジット磁石」と呼ばれている。

【0003】ナノコンボジット磁石は、ソフト磁性相を含みながらも、ハード磁性相との磁氣的結合によって優れた磁石特性を発揮することができる。また、Nd等の希土類元素を含まないソフト磁性相が存在する結果、全体として希土類元素の含有量が低く抑えられる。このことは、磁石の製造コストを低減し、磁石を安定に供給するうえでも好都合である。

【0004】このようなナノコンボジット磁石は、熔融した原料合金を急冷し、それによっていったん非晶質化

した後、熱処理によって微結晶を析出させるという方法を用いて製造される。

【0005】非晶質状態の合金は片ロール法などのメルトスピニング技術を用いて作製されるのが一般的である。メルトスピニング技術は、回転する冷却ロールの外周表面上に溶湯状原料合金を流下し、溶湯原料合金を冷却ロールと短時間だけ接触させることによって原料合金を急冷・凝固させるものである。この方法による場合、冷却速度の制御は冷却ロールの回転周速度を調節することによって行われる。

【0006】凝固し、冷却ロールから離れた合金は、周速度方向に薄く且つ長く伸びたりボン（薄帯）形状になる。この合金薄帯は破断機によって破碎され薄片化したのち、粉碎機によってより細かいサイズに粉碎されて粉末化される。

【0007】その後、結晶化のための熱処理が行われる。この熱処理によって、 $\text{Fe}_3\text{B}$  微結晶および  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  微結晶が生成され、両者は交換相互作用によって磁氣的に結合することになる。

【0008】

【発明が解決しようとする課題】熱処理によってどのような金属組織を形成するかが磁石特性を向上させる上で重要である。しかし、この熱処理は制御性および再現性の観点で幾つかの問題点を有していた。すなわち、非晶質原料合金の結晶化反応で短時間に大きな熱が発生する結果、熱処理装置による合金温度の制御が困難であるという問題があった。特に、大量の原料合金粉末に対して熱処理を施そうとする場合、その温度制御が不能状態に陥りやすかったため、少量ずつの原料合金粉末に対してしか熱処理を施せなくなり、処理レート（単位時間あたりの粉末処理量）が低下してしまうという問題があった。このことは、磁石粉末の量産化にとって大きな支障となっていた。

【0009】本発明は斯かる諸点を鑑みてなされたものであり、その主な目的は、結晶化反応熱を少なくし、それによって微細かつ均質な金属組織を持った磁石粉末を再現性良く効率的に製造するのに適したナノコンポジット磁石用原料合金（粉末）およびその製造方法を提供することにある。

【0010】また、本発明の他の目的は、磁石性能に優れたナノコンポジット磁石粉末の製造方法およびナノコンポジット磁石の製造方法を提供することにある。

【0011】本発明の更に他の目的は、このように優れた特性を持つナノコンポジット磁石を備えたモータを提供することにある。

【0012】

【課題を解決するための手段】本発明によるナノコンポジット磁石用原料合金は、一般式が  $\text{Fe}_{100-x-y}\text{R}_x\text{B}_y$ 、 $\text{Fe}_{100-x-y-z}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z$ 、 $\text{Fe}_{100-x-y-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{M}_u$ 、または  $\text{Fe}_{100-x-y-z-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z\text{M}_u$  で表される

$100-x-y-z-u\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z\text{M}_u$  で表されるナノコンポジット磁石用原料合金であって、RはPrおよびNdの一方または両方の元素を90原子%以上含有し、残部が他のランタン系列元素またはYの一種以上の元素を0%以上10%未満含有する希土類元素であり、MはAl、Si、Ti、V、Cr、Mn、Ni、Cu、Ga、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、W、Pt、Pb、AuおよびAgからなる群から選択された一種以上の元素であり、組成比x、y、zおよびuが、 $2 \leq x \leq 6$ 、 $1.6 \leq y \leq 2.0$ 、 $0.2 \leq z \leq 7$ 、 $0.01 \leq u \leq 7$ を満足し、しかも、X線回折におけるブラッグ反射ピークが $0.179\text{nm} \pm 0.005\text{nm}$ の結晶面間隔に相当する位置にある準安定相Zを含有し、前記ブラッグ反射ピークの強度がハローパターンの最高強度の5%以上200%未満であり、かつ、体心立方型Feの(110)ブラッグ散乱ピークの強度が前記ハローパターンの最高強度の5%未満である。

【0013】本発明によるナノコンポジット磁石用原料合金粉末は、一般式が  $\text{Fe}_{100-x-y}\text{R}_x\text{B}_y$ 、 $\text{Fe}_{100-x-y-z}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z$ 、 $\text{Fe}_{100-x-y-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{M}_u$ 、または  $\text{Fe}_{100-x-y-z-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z\text{M}_u$  で表されるナノコンポジット磁石用原料合金粉末であって、RはPrおよびNdの一方または両方の元素を90原子%以上含有し、残部が他のランタン系列元素またはYの一種以上の元素を0%以上10%未満含有する希土類元素であり、MはAl、Si、Ti、V、Cr、Mn、Ni、Cu、Ga、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、W、Pt、Pb、AuおよびAgからなる群から選択された一種以上の元素であり、組成比x、y、zおよびuが、 $2 \leq x \leq 6$ 、 $1.6 \leq y \leq 2.0$ 、 $0.2 \leq z \leq 7$ 、 $0.01 \leq u \leq 7$ を満足し、しかも、X線回折におけるブラッグ反射ピークが $0.179\text{nm} \pm 0.005\text{nm}$ の結晶面間隔に相当する位置にある準安定相Zを含有し、前記ブラッグ反射ピークの強度がハローパターンの最高強度の5%以上200%未満であり、かつ、体心立方型Feの(110)ブラッグ散乱ピークの強度が前記ハローパターンの最高強度の5%未満である。

【0014】ナノコンポジット磁石用原料合金の製造方法は、一般式が  $\text{Fe}_{100-x-y}\text{R}_x\text{B}_y$ 、 $\text{Fe}_{100-x-y-z}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z$ 、 $\text{Fe}_{100-x-y-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{M}_u$ 、または  $\text{Fe}_{100-x-y-z-u}\text{R}_x\text{B}_y\text{Co}_z\text{M}_u$  で表されるナノコンポジット磁石用原料合金であって、RはPrおよびNdの一方または両方の元素を90原子%以上含有し、残部が他のランタン系列元素またはYの一種以上の元素を0%以上10%未満含有する希土類元素であり、MはAl、Si、Ti、V、Cr、Mn、Ni、Cu、Ga、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、W、Pt、Pb、AuおよびAgからなる群から選択された一種以上

の元素であり、組成比 $x$ 、 $y$ 、 $z$ および $u$ が、 $2 \leq x \leq 6$ 、 $1.6 \leq y \leq 2.0$ 、 $0.2 \leq z \leq 7$ 、および $0.01 \leq u \leq 7$ を満足するナノコンポジット磁石用原料合金を製造する方法において、前記原料合金の溶湯を形成する工程と、前記溶湯を急冷凝固させる工程とを包含し、前記急冷凝固工程に際して前記合金の冷却速度を調整することによって、X線回折におけるブラッグ反射ピークが $0.179 \text{ nm} \pm 0.005 \text{ nm}$ の結晶面間隔に相当する位置にある準安定相Zを凝固後の原料合金が含有し、しかも、前記ブラッグ反射ピークの強度がハローパターンの最高強度の5%以上200%未満であり、かつ、体心立方型Feの(110)ブラッグ散乱ピークの強度が前記ハローパターンの最高強度の5%未満にする。

【0015】前記急冷凝固された原料合金から粉末を製作する工程を更に包含してもよい。

【0016】前記急冷凝固工程において、前記合金の冷却速度を $5 \times 10^4 \sim 5 \times 10^6 \text{ K/秒}$ とし、急冷前の合金の温度 $T_m$ から $400 \sim 800^\circ\text{C}$ だけ低い温度に合金の温度を低下させることが好ましい。

【0017】本発明によるナノコンポジット磁石粉末の製造方法は、一般式が $\text{Fe}_{100-x-y} \text{R}_x \text{B}_y$ 、 $\text{Fe}_{100-x-y-z} \text{R}_x \text{B}_y \text{Co}_z$ 、 $\text{Fe}_{100-x-y-u} \text{R}_x \text{B}_y \text{M}_u$ 、または $\text{Fe}_{100-x-y-z-u} \text{R}_x \text{B}_y \text{Co}_z \text{M}_u$ で表されるナノコンポジット磁石用合金であって、RはPrおよびNdの一方または両方の元素を90原子%以上含有し、残部が他のランタン系列元素またはYの一種以上の元素を0%以上10%未満含有する希土類元素であり、MはAl、Si、Ti、V、Cr、Mn、Ni、Cu、Ga、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、W、Pt、Pb、AuおよびAgからなる群から選択された一種以上の元素であり、組成比 $x$ 、 $y$ 、 $z$ および $u$ が、 $2 \leq x \leq 6$ 、 $1.6 \leq y \leq 2.0$ 、 $0.2 \leq z \leq 7$ 、および $0.01 \leq u \leq 7$ を満足し、しかも、X線回折におけるブラッグ反射ピークが $0.179 \text{ nm} \pm 0.005 \text{ nm}$ の結晶面間隔に相当する位置にある準安定相Zを含有し、前記ブラッグ反射ピークの強度がハローパターンの最高強度の5%以上200%未満であり、かつ、体心立方型Feの(110)ブラッグ散乱ピークの強度が前記ハローパターンの最高強度の5%未満であるナノコンポジット磁石用原料合金の粉末を用意する工程と、前記ナノコンポジット磁石用原料合金の粉末に対して熱処理を施し、それによって、 $\text{Fe}_3\text{B}$ 化合物およびFe-R-B系化合物の結晶化を実行する工程とを包含する。

【0018】前記ナノコンポジット磁石用原料合金の粉末を用意する工程は、前記原料合金の溶湯を形成する工程と、前記溶湯を急冷凝固させる工程と、前記急冷凝固された原料合金を破砕する工程と、前記原料合金を粉砕する工程とを包含し、前記急冷凝固工程において、前記合金の冷却速度を $5 \times 10^4 \sim 5 \times 10^6 \text{ K/秒}$ とし、

急冷前の合金の温度 $T_m$ から $400 \sim 800^\circ\text{C}$ だけ低い温度に合金の温度を低下させることが好ましい。

【0019】本発明によるナノコンポジット磁石の製造方法は、一般式が $\text{Fe}_{100-x-y} \text{R}_x \text{B}_y$ 、 $\text{Fe}_{100-x-y-z} \text{R}_x \text{B}_y \text{Co}_z$ 、 $\text{Fe}_{100-x-y-u} \text{R}_x \text{B}_y \text{M}_u$ 、または $\text{Fe}_{100-x-y-z-u} \text{R}_x \text{B}_y \text{Co}_z \text{M}_u$ で表されるナノコンポジット磁石用合金であって、RはPrおよびNdの一方または両方の元素を90原子%以上含有し、残部が他のランタン系列元素またはYの一種以上の元素を0%以上10%未満含有する希土類元素であり、MはAl、Si、Ti、V、Cr、Mn、Ni、Cu、Ga、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、W、Pt、Pb、AuおよびAgからなる群から選択された一種以上の元素であり、組成比 $x$ 、 $y$ 、 $z$ および $u$ が、 $2 \leq x \leq 6$ 、 $1.6 \leq y \leq 2.0$ 、 $0.2 \leq z \leq 7$ 、 $0.01 \leq u \leq 7$ を満足し、しかも、X線回折におけるブラッグ反射ピークが $0.179 \text{ nm} \pm 0.005 \text{ nm}$ の結晶面間隔に相当する位置にある準安定相Zを含有し、前記ブラッグ反射ピークの強度がハローパターンの最高強度の5%以上200%未満であり、かつ、体心立方型Feの(110)ブラッグ散乱ピークの強度が前記ハローパターンの最高強度の5%未満であるナノコンポジット磁石用原料合金の粉末を用意する工程と、前記ナノコンポジット磁石用原料合金の粉末に対して熱処理を施し、それによって、 $\text{Fe}_3\text{B}$ 化合物およびFe-R-B系化合物の結晶化を実行する工程と、前記熱処理後の原料合金の粉末を用いて成形体を形成する工程とを包含する。

【0020】前記ナノコンポジット磁石用原料合金の粉末を用意する工程は、前記原料合金の溶湯を形成する工程と、前記溶湯を急冷凝固させる工程と、前記急冷凝固された原料合金を破砕する工程と、前記原料合金を粉砕する工程とを包含し、前記急冷凝固工程において、前記合金の冷却速度を $5 \times 10^4 \sim 5 \times 10^6 \text{ K/秒}$ とし、急冷前の合金の温度 $T_m$ から $400 \sim 800^\circ\text{C}$ だけ低い温度に合金の温度を低下させることが好ましい。

【0021】好ましい実施形態では、前記成形体を形成する工程は、前記熱処理後の原料合金の粉末を用いてボンド磁石を作製する工程を含む。

【0022】本発明によるモータは、上記ナノコンポジット磁石の製造方法によって製造されたナノコンポジット磁石を備えている。

【0023】

【発明の実施の形態】本発明では、一般式が $\text{Fe}_{100-x-y} \text{R}_x \text{B}_y$ 、 $\text{Fe}_{100-x-y-z} \text{R}_x \text{B}_y \text{Co}_z$ 、 $\text{Fe}_{100-x-y-u} \text{R}_x \text{B}_y \text{M}_u$ 、または $\text{Fe}_{100-x-y-z-u} \text{R}_x \text{B}_y \text{Co}_z \text{M}_u$ の何れかで表されるナノコンポジット磁石用合金の溶湯を作製した後、その合金溶湯を急冷して凝固する。

【0024】ここで、RはPrおよびNdの一方または



両方の元素を90原子%以上含有し、残部が他のランタン系列元素またはYの一種以上の元素を0%以上10%未満含有する希土類元素であり、MはAl、Si、Ti、V、Cr、Mn、Ni、Cu、Ga、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、W、Pt、Pb、AuおよびAgからなる群から選択された一種以上の元素である。組成比x、y、zおよびuは、 $2 \leq x \leq 6$ 、 $1.6 \leq y \leq 2.0$ 、 $0.2 \leq z \leq 7$ 、および $0.01 \leq u \leq 7$ を満足する。これらの組成限定理由については後述する。

【0025】本発明者は、合金溶湯の冷却凝固に際して、その冷却速度を $5 \times 10^4 \sim 5 \times 10^6$  K/秒とすることが好ましいことを見いだした。また、このような冷却速度にて冷却凝固した合金およびその粉末は、次に述べるような金属ガラス状態にあることがわかった。すなわち、粉末X線回折におけるブラッグ散乱ピークが $0.179 \text{ nm} \pm 0.005 \text{ nm}$ の結晶面間隔に相当する位置にある準安定相Zを含有し、ブラッグ反射ピークの強度がハローパターンの最高強度の5%以上200%未満であり、かつ、体心立方型Feの(110)ブラッグ散乱ピークの強度が前記ハローパターンの最高強度の5%未満である。

【0026】このような原料合金またはその粉末に対して熱処理を施すと、それによって、Fe<sub>3</sub>B微結晶およびR-Fe-B系微結晶の結晶化が生じ、優れた磁石特性を持ったナノコンポジット磁石構造が発現することになる。

【0027】本発明の原料合金は、結晶化のための熱処理を受ける前において金属ガラス構造を有しており、長距離の周期的秩序性を示していないことが粉末X線回折から確認されている。本願発明者の実験によれば、合金溶湯の冷却速度を前述のようにして調節することによって、上記準安定相Zを含む金属ガラス状合金を形成することができ、その後の熱処理によって極めて優れた磁気特性が発揮されることになる。

【0028】本発明の金属ガラス合金を用いて製造した磁石が磁石特性に優れる第1の理由は、上述の金属ガラス状態にある合金中において、Fe<sub>3</sub>B等の結晶成長に必要な微小前駆体（エンブリオ）が高密度で分散しているためと考えられる。そのため、熱処理を行うと、合金中に存在する多数の前駆体が示す短距離秩序を核として結晶成長が進行し、その結果、微細かつ均質な結晶組織が形成されることになる。またFe<sub>3</sub>Bの結晶化が極短範囲の原子拡散によって進行するため、その結晶化を比較的低い温度で達成することが可能になるという利点もある。

【0029】Fe<sub>3</sub>Bの結晶化は590～600℃の温度で生じる。この結晶化の進展に伴って、Nd等の希土類元素がFe<sub>3</sub>Bの周囲の非晶質領域にはき出され、その部分の組成がNd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>Bに近づく。その結果、Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>Bは複雑な構造を持つ三元化合物である

にもかかわらず、長距離の原子拡散を必要とすることなく、結晶化する。Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>Bが結晶化する温度は、Fe<sub>3</sub>Bの結晶化が完了する温度よりも約20～90℃だけ高く、約610～690℃である。

【0030】このように本発明による原料合金では、Fe<sub>3</sub>Bの結晶化とNd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>Bの結晶化とを異なる温度範囲で別々に実行できるため、結晶化に伴う大きな反応熱が短時間に生じることがなく、20nm程度の微細な金属組織を再現性良く生成することができる。このことは、合金結晶化のための熱処理工程を制御する上で重要である。すなわち、大きな反応熱を伴い結晶化が一挙に進展してしまうと、合金の温度を所定範囲内に制御することができなくなるからである。

【0031】準安定相Zは、その実際の構造がまだ確認されていないが、X線回折で特定位置に急峻な回折線ピークを持つため、その存在を定量的に把握することができる。準安定相Zは、 $0.179 \text{ nm} \pm 0.005 \text{ nm}$ の結晶面間隔に相当する位置に鋭いブラッグ散乱ピークを示し、また、 $0.417 \text{ nm} \pm 0.005 \text{ nm}$ の結晶面間隔および $0.267 \text{ nm} \pm 0.005 \text{ nm}$ の結晶面間隔に相当する位置にも、ほぼ同レベルのブラッグ散乱ピークを示す。また、これらに加えて $0.134 \text{ nm} \pm 0.005 \text{ nm}$ にもブラッグピークを示すことがある。

【0032】急冷凝固後に合金中に存在した準安定相Zは、磁石化のための熱処理によって熱分解して最終的には準安定相Fe<sub>3</sub>Bを生成するものと考えられる。この過程は、Fe<sub>3</sub>Bの不均一核の生成が最も頻繁に生じる温度よりも低い温度であって、比較的広い範囲の温度で進行すると考えられる。

【0033】準安定相Zは急冷凝固時の冷却速度が比較的に小さい場合に凝固薄帯の表面付近に形成され、冷却速度が従来の急冷凝固方法の場合のように大きい場合には生成されない特徴を有している。本発明では、準安定相Zを適切な量だけ生成するように冷却速度を調整している。すなわち、本発明では、適切な冷却速度を決定する場合の指標として、準安定相Zの存在を利用している。合金の組成を変更したり、冷却装置を変更した場合でも、準安定相Zの生成量を基に冷却速度を設定しなせば、本発明の原料合金として最適な状態のものが簡単に得られる。なお、準安定相Z自体が微結晶化にとって大きな役割を果たしているか否かは不明である。ただ、準安定相Zがある割合で形成されるように急冷条件を制御すれば、その後の熱処理で高い磁気特性が得られることがわかっている。

【0034】以下、冷却速度が所定範囲から外れた場合に何が生じるかを説明する。

【0035】まず、冷却速度が速すぎる場合を説明する。

【0036】冷却速度が速すぎると、合金はほぼ完全な非晶質状態になる。その場合、Fe<sub>3</sub>Bの不均一核が生

成するサイトの数が極めて少ないため、あとの熱処理で  $\text{Fe}_3\text{B}$  の結晶粒が大きく成長することになる。その結果、微細な結晶組織を形成できず、保磁力などが低下し、優れた磁気特性が発揮されなくなる。

【0037】このように冷却速度が遅すぎる場合、準安定相  $\text{Z}$  の生成が抑制される。その存在比率を X 線回折におけるブラッグ散乱ピークの強度で評価すると、準安定相  $\text{Z}$  によるブラッグ散乱ピーク強度はハローパターンの最高強度の 5% 未満になり、ほとんど観察されないレベルにある。この場合、 $\text{Fe}_3\text{B}$  結晶化のための核を発生するために大きな駆動力が必要となり、結晶化反応温度が高温側に移動する。しかも、その場合いったん結晶化反応が開始すると、結晶化反応が爆発的に進行するため、短時間に大量の熱が発生して原料合金温度が高くなる。その結果、原子拡散が高速で生じるレベルにまで原料合金温度が上昇して反応工程の制御性を失い、粗大な金属組織しか得られなくなってしまう。

【0038】上記結晶化のための熱処理を連続熱処理法を用いて行う場合、単位時間あたりの原料合金粉末供給量を低く抑え、結晶化反応熱が熱拡散によって周囲に逸散できるようにする必要がある。連続熱処理法に代えてバッチ処理法による場合も、同様の理由から、原料合金粉末の処理量を大きく制限する必要がある。

【0039】次に、冷却速度が遅すぎる場合を説明する。

【0040】冷却速度が遅すぎると、周期的規則性が長範囲にわたって形成される。多くの場合、安定相である  $\text{Fe}$  が結晶化してしまう。このように冷却速度が遅すぎると、結晶相のブラッグ反射ピークの強度がハローパターンの上に重なって観察されるようになる。体心立方型  $\text{Fe}$  の最強線である (110) ブラッグ散乱ピークが面間隔 0.203 nm の位置に観測され、その強度がハローパターンの最高強度の 5% 以上となった場合、「冷却速度は遅すぎる」と判断できる。 $\text{Fe}$  は生成時点では高温相のガンマ鉄である可能性があるが、室温では体心立方鉄に変態している。

【0041】最後に、 $\text{Fe}$  の結晶核が生成する程には冷却速度が遅くないが、好ましい冷却速度には達していない場合を説明する。この場合、結晶核エンブリオが既に大きな組織に成長してしまっているため、あとの熱処理工程で微細な結晶組織を形成することができなくなる。この場合の合金は準安定相  $\text{Z}$  を多く含んでおり、粉末 X 線回折によると、準安定相  $\text{Z}$  のブラッグ反射ピークの強度が極めて高くなり、ハローパターンの最高強度の 200% を超える。

【0042】このように準安定相  $\text{Z}$  の比率が非常に大きな状態の原料合金は、あとの熱処理によって粗大な金属組織しか生成することができなくなる。その理由は、 $\text{Fe}_3\text{B}$  の核発生サイトが減少するとともに、平衡相である  $\text{Fe}$  の結晶粒成長が優先的に生じるからである。熱処

理後の金属組織が粗大化すると、 $\text{Fe}_3\text{B}$  や  $\text{Fe}$  の磁化方向と  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  の磁化方向との間の交換相互作用を介した磁氣的結合が不十分となる。その結果、本来のナノコンポジット磁石が持つ高い磁気特性を発現させられなくなる。

【0043】本発明によるナノコンポジット磁石用原料合金の特質を整理すると、下記の通りになる。

【0044】1.  $\text{Fe}_3\text{B}$  の結晶化が極短範囲の原子拡散で進行するため、 $\text{Fe}_3\text{B}$  の結晶化が比較的低温で開始する。その結果、結晶化反応速度が過度に速くはない。

【0045】2.  $\text{Fe}_3\text{B}$  の結晶化核が高密度で分散し、かつ熱平衡相が粗大に結晶化しないため、微細な結晶化金属組織を形成することができる。

【0046】3. 大きな結晶化反応熱を伴うことなく、結晶化を制御性良く実行させることができるようになる。その結果、磁石特性を劣化させることなく、熱処理工程での原料粉末処理量を増大させることができる。

【0047】4.  $\text{Fe}_3\text{B}$  の結晶化に必要な結晶核が原料合金中に高密度で存在するため、磁石化熱処理によって微細かつ均一な金属組織を形成することができる。このことは、高い磁石特性の発現を可能にする。

【0048】冷却速度を  $5 \times 10^4 \sim 5 \times 10^6 \text{ K/秒}$  にするには、回転する冷却ロールの外周表面に溶湯を接触させて急速に抜熱し、溶湯の一部を高速凝固させるとともに、高速凝固によってできた合金薄帯を速やかに溶湯から引き離すことが必要である。そうすることによって溶湯から合金薄帯への熱の流入を遮断し、さらに抜熱することができる。これにより、合金薄帯中で結晶化相変態あるいは過度の構造緩和が起こることを阻止できる。なお、適度の構造緩和は準安定相の生成のために必要である。

【0049】このような高速凝固を工業的かつ定常的に安定した状態で行うには、回転しているロールに対して一定量の溶湯を供給することが必要である。そのためには、溶湯の供給源とロール表面との間に溶湯の溜まり（リザーバーとして働く）を安定的に形成させることが好ましい。このような溶湯の溜まりは、例えば融点以上に加熱したノズルオリフィスを通して一定範囲内の圧力で溶湯を整流化して噴射すれば形成できる（第 1 の急冷凝固方法）。こうして形成した溶湯の溜まりは、通常、「パドル」または「フット」と称される。

【0050】溶湯の溜まりを形成する方法は他にもある。例えば、回転する冷却ロールの外周近傍に耐火物を配置し、耐火物とロール表面との間に上方（ロール表面の移動方向）に開放された空間を形成する。この空間内に溶湯を注いで湯だまりを生成することによってロール外周面に溶湯を接触させ、回転するロール外周面上に溶湯の急冷凝固物を生成せしめる。この凝固物をロール外周面と共に上方に移動させて湯だまりから引き上げる方

法によっても達成される（第2の急凝固方法）。

【0051】次に、第3の急凝固方法を説明する。まず、一對のロールを外周面が対抗するようにして設置し、両ロール間に狭い隙間を設定する。この隙間をロール側面から挟み込むようにして耐火物壁を配置し、これらによって上方に解放された空間を形成する。この隙間空間内に定常的に溶湯を注ぎ、回転するロール表面に溶湯を接触させることによって急凝固物を生成する。このとき、ロール間の隙間部分でロール表面が下方に向かうようにロールを回転させ、ロール間の隙間から下方に向けて急凝固物を排出する。第3の急凝固方法では、数対の回転ロールを更に下方に設け、多段で抜熱することも可能である。

【0052】上記の各急冷方法に対し、溶湯溜まりの生成を必要としない方法もある。それは、回転するロールに向かって溶湯の噴霧流をぶつけ、急速に凝固させる方法（第4の急凝固方法）である。しかしながら、このような方法では、ロール表面にたたきつけられる溶湯液滴の体積及び速度に依存して急凝固速度が変化してしまう。しかも、溶湯液滴の体積及び速度は数倍～数十倍の範囲で分布するため、前述した第1～第3の急凝固方法に比べて急冷速度の分布範囲が広がる傾向がある。その結果、操業条件の設定を経験的に決める必要がある。

【0053】なお、上記の急凝固方法では、何れの場合でもロール内部に水などを流すことによってロール自体を冷却し、ロール外周面の温度を一定値に保持することが好ましい。

【0054】本発明では、急冷前の合金温度（溶湯温度） $T_m$ から400～800℃だけ低い温度に合金の温度を低下させる。上述の回転ロールを用いる何れの方法においても、溶湯の溜まりとロール外周面との接触長さは工学的観点からある一定値以上にすることが困難である。すなわち、第1の急凝固方法の場合、溶湯溜まりの大きさを成る一定範囲以上にすると、溶湯溜まりの生成状態が不安定となり、定常状態を維持できなくなる。第2の急凝固方法では、溶湯溜まりのための空間を設けているため、この上限値は幾らか緩和されるが、ロールと溶湯との接触長さが長くなると、凝固物に溶湯からの熱の流入が継続されるため、凝固物の構造に変化が生じるようになる。これらの観点から、工業的操業においては接触長さを約5mm以上50mm以下にすることが好ましい。

【0055】ロール表面の移動速度は、上記接触長さを規定する接触領域内において所望の冷却速度を達成するように調整される。好ましいロール表面の移動速度は、第1の急凝固方法の場合6～20m/秒程度であり、第2の急凝固方法の場合2～8m/秒程度である。したがって、接触長さが10mm、表面速度が6m/秒の場合、1200℃から800℃まで冷却すれば、2.4

×10<sup>5</sup> K/秒の冷却速度が得られることになる。

【0056】冷却条件及び溶湯とロールとの接触長さから要求される最低のロール表面速度は、例えば接触長さ5mmの場合、1200℃から800℃までの幅400Kの温度区間を最低冷却速度 $5 \times 10^4$  K/秒で冷却する条件に相当する。接触時間は400K ÷  $5 \times 10^4$  K/秒から8m/秒であることが要求されるので、最低ロール表面速度は5mm ÷ 8m/秒から約0.63m/秒となる。一方、最高のロール周速度は、例えば接触長さ50mmで1200℃から400℃までの幅800Kの温度区間を $5 \times 10^6$  K/秒で冷却することに相当し、同様にして、312.5m/秒となる。

【0057】ロール表面速度が遅いと、溶湯供給レート変動の影響を受けやすくなるため望ましくない。また、ロール表面速度が速すぎると、溶湯溜まりを攪乱して定常状態の維持が困難になるうえ、ロールが高速回転による遠心力に耐えるように機械強度を高める必要が生じるため、好ましくない。従って、上述のように、安定した工業的操業を実現するためには、第1の急冷方法では通常6～20m/秒程度、第2の急冷方法では2～8m/秒程度が好ましい。

【0058】冷却速度 $5 \times 10^4 \sim 5 \times 10^6$  K/秒で上述の方法により得られた合金の厚さは、通常70～300μm程度の範囲内にある。急凝固における凝固界面の移動速度は溶湯とロール表面との伝熱係数により変化するが、本合金系では50mm/秒～100mm/秒の程度である。従って、合金薄帯の厚さは、例えば接触長が10mmで表面速度6m/秒で1200℃から800℃まで冷却すれば、接触時間が0.167m/秒であるから、約80μm～170μmである。

【0059】以下、図面を参照しながら、本発明の実施形態を説明する。

【0060】〔原料合金およびその粉末の製造方法〕本実施形態では、図1（a）および（b）に示す装置を用いて原料合金を製造する。酸化しやすい希土類元素を含む原料合金の酸化を防ぐため、不活性ガス雰囲気中で合金製造工程を実行する。不活性ガスとしては、ヘリウムまたはアルゴン等の希ガスをを用いることが好ましい。窒素は希土類元素と反応しやすいため、不活性ガスとして用いることは好ましくない。

【0061】図1の装置は、真空または不活性ガス雰囲気を保持し、その圧力を調整することが可能な原料合金の溶解室1および急冷室2を備えている。

【0062】溶解室1は、所望の磁石合金組成になるように配合された原料20を高温にて溶解する溶解炉3と、底部に出湯ノズル5を有する貯湯容器4と、大気の進入を抑制しつつ配合原料を溶解炉3内に供給するための配合原料供給装置8とを備えている。貯湯容器4は原料合金の溶湯21を貯え、その出湯温度を所定のレベルに維持できる加熱装置（不図示）を有している。

【0063】急冷室2は、出湯ノズル5から出た溶湯21を急冷凝固するための回転冷却ロール7と、これによって急冷凝固された原料合金を急冷室2内で破碎する破断機10とを備えている。この装置によれば、溶解、出湯、急冷凝固、破断等を連続かつ平行して実行することができる。このような装置は、例えば特開平8-277403号公報に詳しく記載されている。

【0064】この装置においては、溶解室1および急冷室2内の雰囲気およびその圧力が所定の範囲に制御される。そのために、雰囲気ガス供給口1b、2b、8b、および9bとガス排気口1a、2a、8a、および9aとが装置の適切な箇所に設けられている。

【0065】溶解炉3は傾動可能であり、ロート6を介して溶湯21を貯湯容器4内に適宜注ぎ込む。溶湯21は貯湯容器4内において不図示の加熱装置によって加熱される。

【0066】貯湯容器4の出湯ノズル5は、溶解室1と急冷室2との隔壁に配置され、貯湯容器4内の溶湯21を下方に位置する冷却ロール7の表面に流下させる。出湯ノズル5のオリフィス径は、例えば0.5~2.0mmである。溶湯21の粘性が大きい場合、溶湯21は出湯ノズル5内を流れにくくなるが、溶解室1と急冷室2との間に適当な大きさの圧力差を形成することによって、溶湯21の出湯をスムーズに実行することができる。

【0067】冷却ロール7の表面は例えばクロムめっき層で覆われており、冷却ロール7の直径は例えば300~500mmである。冷却ロール7内に設けた水冷装置の水冷能力は、単位時間あたりの凝固潜熱と出湯量とに応じて算出し、調節される。

【0068】本装置によれば、例えば合計20kgの原料合金を20~40分間で急冷凝固させることができる。こうして形成した合金は、破断前においては、厚さ：70~150μm、幅：1.5~6mmの合金薄帯（合金リボン）22であるが、破断装置10によって長さ2~150mm程度の合金薄片23に破碎されたのち、回収機構部9によって回収される。図示している装置例では、回収機構部9に圧縮機11を備え付けており、それによって薄片23を圧縮することができる。

【0069】次に、図1の装置を用いた原料合金の製造方法を説明する。

【0070】まず、一般式が $Fe_{100-x-y}R_xB_y$ 、 $Fe_{100-x-y-z}R_xB_yCo_z$ 、 $Fe_{100-x-y-u}R_xB_yM_u$ 、または $Fe_{100-x-y-z-u}R_xB_yCo_zM_u$ の何れかで表されるナノコンポジット磁石用合金の溶湯21を作製し、溶解室1の貯湯容器4に貯える。ここで、R、M、組成比x、y、zおよびuの範囲などは、前述した通りである。

【0071】次に、この溶湯21は出湯ノズル5から水冷ロール7上に出湯され、水冷ロール7との接触によっ

て急冷され、凝固する。急冷凝固方法としては、冷却速度の高精度の制御が可能な方法を用いる必要があり、本実施形態では液体急冷法の一つである片ロール法を用いている。急冷凝固のためには、この他にガスアトマイズ法を用いることも可能であるが、この方法によれば冷却速度が粉末粒径に大きく依存して変化し、適切な冷却速度を経た粉末粒子の収率を高められないため、本発明には不適當である。

【0072】本実施形態では、溶湯21の冷却凝固に際して、冷却速度を $5 \times 10^4 \sim 5 \times 10^6$  K/秒とする。この冷却速度で合金の温度を $\Delta T_1$ だけ低い温度に低下させる。急冷前の合金溶湯21の温度は融点 $T_m$ に近い温度（例えば1200~1300℃）にあるため、合金の温度は冷却ロール7上で $T_m$ から $(T_m - \Delta T_1)$ にまで低下する。本願発明者の実験によれば、最終的な磁石特性を向上させるという観点から $\Delta T_1$ は400~800℃の範囲内にあることが好ましい。

【0073】合金の溶湯21が冷却ロール7によって冷却される時間は、回転する冷却ロール7の外周表面から合金が接触してから離れるまでの時間に相当し、本実施形態の場合は0.5~2ミリ秒である。その間に、合金の温度は更に $\Delta T_2$ だけ低下し、凝固する。その後、凝固した合金は冷却ロール7から離れ、不活性雰囲気中を飛行する。合金は薄帯状で飛行している間に雰囲気ガスに熱を奪われる結果、その温度は $(T_m - \Delta T_1 - \Delta T_2)$ に低下する。 $\Delta T_2$ は、装置のサイズや雰囲気ガスの圧力によって変化するが、約100℃またはそれ以上である。

【0074】本実施形態では、合金薄帯22の温度が $(T_m - \Delta T_1 - \Delta T_2)$ になった段階で装置内で速やかに破碎工程を実行し、その場で合金薄片23を作製する。そのため、 $(T_m - \Delta T_1 - \Delta T_2)$ が合金のガラス化温度 $T_g$ よりも低くなるように $(\Delta T_1 + \Delta T_2)$ の大きさを調整することが好ましい。もし、 $(T_m - \Delta T_1 - \Delta T_2) \geq T_g$ であれば、合金が軟化した状態にあり、その破断が困難になるからである。凝固合金の破断・粉碎工程を他の装置で別途実行する場合は、合金温度が室温程度に低下するため、 $(\Delta T_1 + \Delta T_2)$ の大きさを考慮する必要はない。

【0075】なお、急冷室2内の絶対圧力は、2~30kPaの範囲内に設定することが好ましく、3~10kPaの範囲内に設定することが更に好ましい。このような減圧状態で溶湯21を冷却ロール7上に流下すれば、溶湯21とロール7の表面との間に雰囲気ガスがまき込まれるおそれなくなり、溶湯21の冷却速度を従来より低くしても、冷却状態が均一化され、表面形状の優れた合金薄帯22が得られるからである。これに対して、常圧雰囲気中において、本実施形態のように遅い周速度で回転する冷却ロール7上に溶湯21を流下すると、合金薄帯22の表面形状が劣化してしまうおそれがある。

【0076】また、本実施形態のように、急凝固工程に引き続いて破碎装置による凝固合金の破碎工程を速やかに実行すれば、長い合金リボンとして冷却ロールから吐き出された急冷合金を比較的狭い空間内でコンパクトに回収することができる。急凝固装置と破碎装置とを別構成にすると、いったん急冷合金を長い薄帯として、かさばった状態で収納する必要が生じる。

【0077】破碎装置によって破碎された合金薄片を公知の機械的粉碎装置によって更に粉碎すれば、熱処理工程やその後の成形工程に適した大きさの合金粉末を作製することができる。本実施形態では、パワーミル装置で約 $850\mu\text{m}$ 以下となるまで合金の粗粉碎を行った後、ピンディスクミル装置によって粒度が約 $150\mu\text{m}$ 以下となるまで粉碎する。

【0078】〔ナノコンポジット磁石粉末の製造方法〕以下に、図2を参照しながら、上記原料合金粉末に対して行う熱処理方法を説明する。

【0079】図2は、フープベルトを用いた粉末焼成炉装置を示している。この装置は、本体28によって回転可能に支持された回転ロール24および25と、それらの回転ロール24および25の回転によって一方向に所定速度で駆動されるフープベルト26とを備えている。原料合金の粉末はフープベルト26上の原料フィード位置Aに供給され、図中左方に運搬される。フープベルト26上に供給された粉末は、摺切板27によって均され、それによって粉末の高さが一定レベル以下（例えば高さ2～4mm）に調整される。その後、粉末は金属チューブに囲まれた加熱ゾーンに入り、そこで微結晶化のための熱処理を受ける。加熱ゾーン（例えば長さ1100mm）内には、例えば3ゾーンにわけて不図示のヒータが配置されている（1ゾーンの長さは例えば300mm）。粉末は加熱ゾーン内を移動しながら、熱処理を受けることになる。加熱ゾーンの後段には、例えば長さ800mmの冷却ゾーンCが存在し、粉末は水冷された金属筒内を通過することによって冷却される。冷却された粉末は、回転ローラ25の左下方で不図示の回収装置によって回収される。

【0080】この熱処理装置によれば、与えられた加熱ゾーンの長さに対して、フープベルト26の移動速度を調整することによって熱処理工程を制御することができる。

【0081】熱処理工程としては、例えば、昇温レート $100\sim150^\circ\text{C}/\text{分}$ にて熱処理温度 $590\sim700^\circ\text{C}$ にまで上昇させ、その状態を5～15分程度のあいだ保持すればよい。その後、合金温度を降温レート $100\sim150^\circ\text{C}/\text{分}$ にて室温レベルまで低下させる。

【0082】なお、熱処理の処理粉末量を増大させるには、フープベルト26の幅を広くし、フープベルト26の単位長さ当たりの粉末供給量を大きくする一方、加熱ゾーンの長さを長くし、回転ローラ24および25の回

転周速度を早くすればよい。本発明による合金粉末によれば、熱処理に際して急激に大きな結晶化反応熱が生成されないため、熱処理工程における合金粉末の温度制御が容易である。その結果、粉末供給量を増加しても、安定した磁気特性を持つ磁石粉末を作製できる。

【0083】上記熱処理装置による熱処理を受けた原料粉末は、前述したように微結晶化し、ナノコンポジット磁石としての特性を発揮できるようになる。こうして、熱処理前においては金属ガラス状態にあり、硬質磁性材料としての特性を示さなかった原料合金粉末が、熱処理によって磁気特性に優れたナノコンポジット磁石合金粉末に変化する。

【0084】〔磁石の製造方法〕以下に、上記ナノコンポジット磁石合金粉末から磁石を製造する方法を説明する。

【0085】まず、前述のようにして得られたナノコンポジット磁石合金粉末にエポキシ樹脂からなるバインダーと添加剤とを加え、混練することによってコンパウンドを作製する。次に、コンパウンドの所望形状の成形空間を持つ成形装置によってプレス成形した後、加熱硬化工程、洗浄工程、コーティング工程、検査工程、着磁工程を経て、最終的なボンド磁石を得ることができる。

【0086】成形加工は、上述の圧縮成形に限定されるわけではなく、公知の押出成形、射出成形、または圧延成形によってもよい。磁石粉末は、採用する成形法の種類に応じてプラスチック樹脂やゴムと混練されることになる。

【0087】なお、射出成形による場合、樹脂として広く使用されているポリイミド（ナイロン）の他、PPSのように高軟化点樹脂を使用することができる。これは、本発明の磁石粉末が低希土類合金から形成されているため、酸化されにくく、比較的に高い温度で射出成形を行っても磁石特性が劣化しないからである。

【0088】また、本発明の磁石は酸化されにくいいため、最終的な磁石表面を樹脂膜でコートする必要もない。従って、例えば、複雑な形状のスロットを持つ部品のスロット内に射出成形によって本発明の磁石粉末および溶融樹脂を圧入し、それによって複雑な形状の磁石を一体的に備えた部品を製造することも可能である。

【0089】〔モータ〕次に、このようにして製造した磁石を備えたモータの実施形態を説明する。

【0090】本実施形態のモータは、IPM（Inner Permanent Magnet）型モータであり、前述の製造方法によって作製したボンド磁石を一体型ロータのスプリング磁石として用いる。

【0091】なお、本発明の磁石は、この種のモータ以外にも、他の種類のモータやアクチュエータに好適に用いられることは言うまでもない。

【0092】以下に、本発明の実施例および比較例を説明する。

【0093】〔第1の実施例〕本実施例では、絶対圧力が30kPa以下のアルゴン雰囲気中で前述の急冷凝固工程を行った。冷却ロールとしては、厚さ5～15 $\mu$ mのクロムめっき層で覆われた銅合金製ロール（直径：350mm）を用いた。その銅合金製ロールを10m/秒の周速度で回転しながら、その外周表面上に原料合金の溶湯を流下し、急冷凝固させた。溶湯の温度は輻射温度計で測定したところ、1300℃であった。溶湯は、オリフィスから毎秒10～20gのレートで直径1.3～1.5mmにして落下させた。

【0094】表1に各実施例についての溶湯の組成、およびハローパターンの最高強度に対する準安定相Zのブラッグ反射強度の比（％）を示す。表1からわかるように、何れの実施例についても「ブラッグ反射強度の比」が5～200％の範囲内にあった。なお、表1において、例えば「R」の欄に記載されている「Nd2.5+Pr1」という表記は、希土類元素RとしてNdとPrとを含み、それぞれの組成比が2.5原子％および1原子％であることを意味している。

【0095】図3（a）は、番号2の実施例に関する粉末X線回折パターンを示している。図3（a）からわかるように、背景をなすハローパターンが2 $\theta$ ＝約43°において最高強度を示す一方、2 $\theta$ ＝51.4°において急峻な強度ピークが観察される。この急峻な強度ピークは、0.179nm±0.005nmの結晶面間隔に相当する位置に現れたブラッグ散乱ピークである。このブラッグ散乱ピークは、準安定相Zによるものである。他に、0.417nm±0.005nmの結晶面間隔、および0.267nm±0.005nmの結晶面間隔に相当する位置にも、準安定相Zによる回折線が観測される。

【0096】なお、上記の粉末X線回折パターンの観測は、測定装置としてリガクRINT2000を用い、試料とCuターゲットとの間にモノクロメータを設置して実行した。

【0097】本実施例の原料合金を850 $\mu$ m以下の粒径を持つ粉末に粉碎した後、図2の粉体焼成炉（試験用：長さ2m）で原料合金粉末に熱処理を施した。原料合金粉末は加熱ゾーンを10分間で通過した後、冷却ゾーンCを10分間で通過した。熱処理雰囲気はアルゴンガスであり、単位面積あたり0.6g/cm<sup>2</sup>の搭載密度で原料合金粉末を供給した。単位時間あたりの処理量を3kgとした場合の磁気特性と最適熱処理温度とを表2に示す。

【0098】〔比較例1〕表3に示す組成を有する溶湯を用いて、実施例と同様のプロセスを実行した。

【0099】実施例との相違点は溶湯の冷却速度にあり、この比較例では、ロール周速度を20m/秒とした。他の条件は、実施例の条件と実質的に同一である。表3から、ハローパターンの最高強度に対する準安定相

Zのブラッグ反射強度の比（％）が5％未満であることがわかる。

【0100】図3（b）は、番号2の実施例に関する粉末X線回折パターンを示している。図3（b）からわかるように、準安定相Zによるブラッグ散乱ピークが明瞭には観測されなかった。

【0101】本比較例に関する最適熱処理温度および熱処理後の磁気特性を表4に示す。熱処理装置および方法は実施例の場合と同一である。表4から、保磁力が実施例に比較して低く、磁石特性が劣っていることがわかる。この原因は、熱処理の制御性がわるく、望ましい結晶成長が実現していないためである。

【0102】実施例の磁石特性と同等の磁石特性を発現させるには、熱処理時の粉末処理量を1時間あたり0.7kgに低下させる必要があった。比較例の場合、熱処理の制御性が低下しているため、合金粉末の量を少なくして処理しない限り、所望の金属組織を持った磁石合金を得ることができない。このことは、比較例は磁石化のための熱処理工程でスループットが劣っており、量産に向いていないことを示している。

【0103】〔比較例2〕表5に示す組成を有する溶湯を用いて、実施例と同様のプロセスを実行した。

【0104】実施例との相違点は冷却速度および溶湯の流量にある。この比較例では、ロール周速度を5m/秒とし、毎秒20～30gのレートで溶湯を落下させた。熱処理時の粉末処理量は、1時間あたり3kgとした。他の条件は、実施例の条件と実質的に同一である。

【0105】表5には、ハローパターンの最高強度に対する準安定相Zのブラッグ反射強度の比（％）と、体心立方型Feの（110）ブラッグ散乱ピークの強度の比（％）が示されている。表5からわかるように、冷却速度が遅すぎると、ハローパターンの最高強度に対する準安定相Zのブラッグ反射強度の比（％）は200％を超えている。

【0106】図4は、番号2の実施例に関する粉末X線回折パターンを示している。図4からわかるように、準安定相Zによるブラッグ散乱ピークは顕著に観測されるが、ハローパターンの強度が著しく低下している。

【0107】本比較例について、熱処理後の磁気特性と最適熱処理温度とを表5に示す。熱処理装置および方法は実施例の場合と同一である。表6から、保磁力が実施例に比較して低く、磁石特性が劣っていることがわかる。

【0108】熱処理時の粉末処理量を変化させても、実施例の磁石特性と同等の磁石特性を発現させることはできなかった。このことから、冷却速度が遅すぎると、好ましいナノコンポジット組成を得ることはできなくなることがわかる。

【0109】〔第2の実施例〕以下、前述した第2の方法による実施例を説明する。

【0110】本実施例では、図1の装置において、ノズルオリフィスと回転ロールの相対位置を変更した。より詳細には、冷却ロール7の中心を基準にして斜め45度上方から樋を介して溶湯を傾注し、樋とロール外周面とで囲まれる上方解放の空間（幅10mm）内で溶湯の深さが5mm～8mmとなるように制御しながら溶湯を急冷凝固した。なお、本実施例で使用した原料合金の組成は、表1および表3に記載されたものと同一である。

【0111】ロール表面と接触して凝固した合金薄帯は、ロール7の回転に伴って上方に引き出され、ロール7の頂上を過ぎた付近でロール7から剥がれて下方に落下した。その後、合金薄帯は滑り台を介して粉碎機に導入され、粉碎された。このときのロール周速度は5m/秒であった。溶湯温度は湯だまりの位置で1200℃～1280℃であり、冷却時の雰囲気圧力は40kPa～50kPaであった。合金薄帯の温度は、波長帯域3～5μmの赤外線強度を測定し、鉄の黒体輻射を仮定してステファン・ボルツマン分布から推定した。こうして得た合金薄帯の推定温度は、湯だまりから引き出された直後に既に約800℃～900℃まで低下していた。また、得られた合金薄帯の厚さは100μm～170μmであった。凝固時の急冷速度は、溶湯とロールの接触長さが湯の深さの1.4倍（1/cos45度）として、 $1.3 \times 10^6$  K/秒～ $3.4 \times 10^6$  K/秒と見積もられた。

【0112】溶湯は湯だまりから引き上げられた後、さらに速やかに抜熱されるため、ロール7から剥離する時点での合金薄帯温度は400～500℃に低下していた。本実施例で使用した装置のロール径は350mmであったため、溶湯がロールに接触してから離れるまでの時間はロールが1/8回転する時間に相当し、約20m/秒であった。従って、溶湯のロール上での平均の冷却速度は $3.6 \times 10^4$  K/秒～ $4.5 \times 10^4$  K/秒であったと見積もられる。

【0113】これらの合金のガラス化遷移温度は、非晶質合金を20℃/分で加熱する条件で熱分析を行い、Fe<sub>3</sub>Bの結晶化温度（約590～600℃）以下でガラス遷移が観察される場合でもせいぜい約550℃～580℃である。一方、そのような熱分析でガラス遷移が観測されない場合は、ガラス化遷移温度は結晶化温度以上であることになる。本実施例の場合、合金薄帯がロール7から離れる時点における合金薄帯温度が400～500℃であったため、合金薄帯はガラス化遷移温度以下に急冷されてからロール7を離れたことがわかる。

【0114】このようにして得られた合金薄帯をX線回

折装置によりCu-Kα線を用いて測定した結果、図5に示す回折パターンが得られた。この回折パターンにある回折線は、図中に示したようにFe<sub>23</sub>B<sub>6</sub>相として指数付けできるものであることが分かった。

【0115】この原料を図2に示した評価用熱処理炉を用いて3kg/hの供給量で熱処理したところ、それぞれ表7に示す熱処理温度（炉の設定温度）において表7に示す磁石特性が得られた。同一組成の合金について、0.7kg/hの供給量で熱処理した比較例1と本実施例とを比べると、本実施例の磁気特性が相対的に高いことがわかる。言いかえると、本実施例の熱処理工程はスループットが高い。なお、表7の最左欄の番号は、表1および表3に示されている番号に対応しており、同じ番号は同一組成の原料合金を示している。

【0116】〔第3の実施例〕以下、前述した第3の方法による実施例を説明する。

【0117】ロール径150mmの一对の炭素鋼製急冷ロールをロール間距離が160μmとなるようにして相対配置し、ロール間の隙間位置においてロール表面が下方に移動するようにロールを同一速度で互いに逆方向に回転させた。本実施例でも、ロール表面速度を5m/秒とした。ロール側面に耐火物フェルトを介して耐火物の堰を作り、溶湯が側面方向へ漏れないようにした。このようにして上方から石英ノズルオリフィスを通して溶湯をロール間隙間に向かって流下させ、ロール間の隙間空間内に湯だまりを形成した。湯だまりの幅（ロール間隔と平行方向）に基づいて推定した湯だまり深さは約10mmであった。溶湯はロール間の隙間から下方に引き出され、連続した急冷合金薄帯が形成された。急冷前の溶湯温度は1300℃、合金薄帯温度はロール直下で約800℃であった。従って、平均冷却速度は約 $2.5 \times 10^5$  K/秒と見積もられた。本実施例では、薄帯をさらに冷却アルゴンガス流により抜熱し、薄帯温度を500℃以下にまで低下させた。

【0118】この合金を図2に示した評価用熱処理炉を用いて3kg/時間の供給量で熱処理したところ、それぞれ表8に示す最適熱処理温度（炉の設定温度）において表8に示す磁石特性が得られた。同一組成の合金について、0.7kg/時間の供給量で熱処理した比較例1と本実施例とを比べると、本実施例の磁気特性が相対的に高いことがわかる。言いかえると、本実施例の熱処理工程はスループットが高い。

【0119】

【表1】

## 実施例

番号	組成					ハローパターンピークに対する ZのX線回折強度比(%)
	Fe	B	R	M	Co	
1	79.5	17	Nd3	Si1		150
2	74.3	18.5	Nd3.5	Cr0.7	3	120
3	74	20	Nd2.5+Pr1	Cu0.5+Nb1	1	120
4	75.5	18.5	Nd4	Cr2	0	70
5	74	18	Nd2+Pr2	Ga1	3	60
6	72	17.5	Nd4.5	Ag0.5+Cu1	4.5	40
7	76	20	Nd2.5+Pr1	Zr0.5	2	130
8	66	18.5	Nd5.5	Cr5	5	10
9	71.5	18.5	Nd5	V5	0	20
10	76.5	18	Pr2+Tb1	Al0.5	2	130
11	74.4	18.5	Nd3+Dy1	Mo0.1	3	100
12	71.4	19	Pr3+Ho0.5	Hf0.1	6	110
13	77.5	18	Pr3+Sm0.5	Ca1	2	110
14	74.5	17	Nd4	Au0.5+Pt1	3	80
15	78	18	Nd4	none	0	120

【 0 1 2 0 】

【 表 2 】



実施例の合金を用いて作製したナノコンポジット磁石の熱処理温度と磁気特性

番号	最適熱処理温度 (°C)	磁気特性(フレーク状試料)		
		HcJ(kA/m)	Br(T)	(BH)max(kJ/m <sup>3</sup> )
1	600	286	1.26	124
2	595	288	1.14	126
3	650	228	1.22	122
4	610	322	1.16	102
5	640	346	1.18	133
6	650	310	1.15	128
7	660	276	0.93	96
8	620	526	0.86	86
9	625	410	0.85	79
10	640	376	1.08	112
11	680	358	1.08	119
12	675	333	0.96	102
13	690	250	1.12	98
14	595	344	1.12	130
15	605	240	1.28	108

【 0 1 2 1 】

【 表 3 】

比較例1

番号	組成					ハローパターンピークに対する ZのX線回折強度比(%)
	Fe	B	R	M	Co	
16	79.5	17	Nd3	Si1		4
17	74.3	18.5	Nd3.5	Cr0.7	3	3
18	74	20	Nd2.5+Pr1	Cu0.5+Nb1	1	4
19	75.5	18.5	Nd4	Cr2	0	<2
20	74	18	Nd2+Pr2	Ga1	3	<2
21	72	17.5	Nd4.5	Ag0.5+Cu1	4.5	<2
22	76	20	Nd2.5+Pr1	Zr0.5	2	4
23	66	18.5	Nd5.5	Cr5	5	<2
24	71.5	18.5	Nd5	V5	0	<2
25	76.5	18	Pr2+Tb1	Al0.5	2	<2
26	74.4	18.5	Nd3+Dy1	Mo0.1	3	<2
27	71.4	19	Pr3+Ho0.5	Hf0.1	6	3
28	77.5	18	Pr3+Sm0.5	Ga1	2	4
29	74.5	17	Nd4	Au0.5+Pt1	3	<2
30	78	18	Nd4	none	0	4

【 0 1 2 2 】

【 表 4 】

比較例1の合金を用いて作製したナノコンポジット磁石の熱処理温度と磁気特性

番号	最適熱処理温度 ( $^{\circ}\text{C}$ )	磁気特性(フレーク状試料)		
		HcJ(kA/m)	Br(T)	(BH)max(kJ/m <sup>3</sup> )
16	620	222	1.16	92
17	610	221	0.92	89
18	680	202	1.09	98
19	640	263	1.03	92
20	660	296	1.04	103
21	670	290	0.98	98
22	670	202	0.85	76
23	640	446	0.81	68
24	635	388	0.80	67
25	650	316	0.99	92
26	680	318	1.01	101
27	685	298	0.92	82
28	695	223	1.01	78
29	620	304	1.03	104
30	660	221	1.15	94

【 0 1 2 3 】

【 表 5 】

比較例2

番号	組成					ハローパターンピークに対する X線回折強度比	
	Fe	B	R	M	Co	Z (%)	Fe (%)
31	79.5	17	Nd3	Si1		550	<4
32	74.3	18.5	Nd3.5	Cr0.7	3	900	250
33	74	20	Nd2.5+Pr1	Cu0.5+Nb1	1	550	8
34	75.5	18.5	Nd4	Cr2	0	470	6
35	74	18	Nd2+Pr2	Ga1	3	560	120
36	72	17.5	Nd4.5	Ag0.5+Cu1	4.5	310	10
37	76	20	Nd2.5+Pr1	Zr0.5	2	340	15
38	66	18.5	Nd5.5	Cr5	5	300	20
39	71.5	18.5	Nd5	V5	0	290	90
40	76.5	18	Pr2+Tb1	Al0.5	2	330	20
41	74.4	18.5	Nd3+Dy1	Mo0.1	3	250	<4
42	71.4	19	Pr3+Ho0.5	Hf0.1	6	320	10
43	77.5	18	Pr3+Sm0.5	Ta1	2	340	33
44	74.5	17	Nd4	Au0.5+Pt1	3	280	130
45	78	18	Nd4	none	0	230	80

【 0 1 2 4 】

【 表 6 】

比較例2の合金を用いて作製したナノコンポジット磁石の熱処理温度と磁気特性

番号	最適熱処理温度 (°C)	磁気特性(フレーク状試料)		
		H <sub>coJ</sub> (kA/m)	B <sub>r</sub> (T)	(BH) <sub>max</sub> (kJ/m <sup>3</sup> )
31	620	202	1.07	88
32	610	195	0.90	78
33	680	199	0.99	91
34	640	203	0.71	72
35	660	246	0.92	84
36	670	280	0.96	94
37	670	189	0.75	56
38	640	402	0.78	58
39	635	378	0.77	58
40	650	278	0.91	68
41	680	228	0.89	75
42	685	228	0.90	77
43	695	201	0.92	58
44	620	248	0.84	78
45	675	198	0.98	82

【0125】

【表7】

番号	最適熱処理温度 (°C)	磁気特性 (フレーク状試料)		
		HcJ (kA/m)	Br (T)	(BH)max(kJ/m <sup>3</sup> )
1	660	280	1.24	120
2	640	282	1.11	121
3	690	230	1.23	119
4	680	330	1.15	98
5	690	340	1.16	128
6	690	310	1.12	122
7	690	272	0.96	93
8	660	528	0.84	82
9	680	402	0.96	80
10	670	368	1.08	112
11	690	356	1.07	110
12	690	324	0.95	112
13	710	240	1.11	95
14	650	344	1.13	124
15	640	236	1.28	105

【 0 1 2 6 】

【 表 8 】

番号	最適熱処理温度 (°C)	磁気特性 (フレーク状試料)		
		HcJ (kA/m)	Br (T)	(BH)max(kJ/m <sup>3</sup> )
1	660	270	1.20	110
2	640	273	1.03	101
3	690	212	1.17	111
4	680	330	1.15	98
5	690	330	1.12	118
15	640	230	1.21	98

【 0 1 2 7 】 「 組成限定理由 」 最後に、合金組成の限定理由を説明する。

【 0 1 2 8 】 希土類元素 R は、ハード磁性相である  $R_2Fe_{14}B$  に必須の元素である。本発明での R は、Pr および Nd の一方または両方の元素を 90 原子% 以上含有し、残部が他のランタン系列元素または Y の一種以上の元素を 0 % 以上 10 % 未満含有する。Pr および Nd

の何れか一方の元素は、一軸結晶磁気異方性を持つ  $R_2Fe_{14}B$  を生成するために不可欠である。Pr および Nd 以外の希土類元素は、適宜任意に選択される。R の組成比は、2 原子% を下回ると保磁力発生効果が少なすぎるので好ましくない。一方、R の組成比が 6 原子% を超えると、 $Fe_3B$  相および  $Nd_2Fe_{14}B$  相が生成されず、 $\alpha-Fe$  相が主相となってしまうため、保磁

力が著しく低下してしまうことになる。以上のことから、Rの組成比 $x$ については、 $2 \leq x \leq 6$ であることが好ましい。

【0129】Bは、ソフト磁性相である $\text{Fe}_3\text{B}$ およびハード磁性相である $\text{R}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ の両方にとって必須の元素である。Bの組成比 $y$ が16～20原子%の範囲から外れると所要の保磁力が発揮されないため、Bの組成比 $y$ については $16 \leq y \leq 20$ であることが好ましい。更に、Bがこの組成範囲を外れると、融点が上昇し、溶解温度および貯湯容器の保温温度を高める必要が生じ、また、非晶質生成能も低下するので所望の急冷合金組織が得られにくくなる。

【0130】Coは、キュリー温度を向上させることによって磁気特性の温度変化依存性を減少させ、その結果、磁気特性を安定化させるという機能を持つ。また、合金溶湯の粘性を改善するという機能もあり、溶湯流れの安定化にも寄与する。Coの添加割合が0.02原子%を下回ると上記機能が十分に発揮されず、7原子%を超えると磁化特性が低下し始める。Coの添加は、これらの機能を発揮させたい場合に行えば良く、本発明の効果をj得る上でCoの添加が不可欠であるわけではない。Coを添加する場合は、上述の理由から、その組成比 $z$ について $0.2 \leq z \leq 7$ が成立することが好ましい。

【0131】Mは、保磁力をできるだけ増加させたい場合などに添加する。Mの添加割合が0.01原子%を下回ると、保磁力増加が十分に観察されず、Mの添加割合が7原子%を超えると、磁化が低下する。従って、Mを添加する場合は、その組成比 $u$ について、 $0.1 \leq z \leq 7$ が成立することが好ましい。Mの中で、Crは保磁力増加の他に耐食性向上の効果も発揮する。また、Cu、Au、Agは結晶化熱処理工程での適正温度範囲を拡大する効果がある。

#### 【0132】

【発明の効果】本発明によるナノコンポジット磁石用原料合金によれば、 $\text{Fe}_3\text{B}$ の結晶化が極短範囲の原子拡散で進行するため、 $\text{Fe}_3\text{B}$ の結晶化が比較的低温で可能となる。また、 $\text{Fe}_3\text{B}$ の結晶化が進行する温度範囲が $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ の結晶化が進行する温度範囲からずれるため、熱処理時にそれぞれの結晶化が時間的に別々に起こる。このため、結晶化反応熱が広い温度範囲に分散し、大きな結晶化反応熱が一度に放出されることなく、微結晶化を制御性良く実行させることができるようになる。その結果、磁石特性を劣化させることなく、熱処理工程での原料粉末処理量を向上させることができる。

【0133】また、 $\text{Fe}_3\text{B}$ の結晶化に必要な結晶核が原料合金中に高密度で存在するため、磁石化熱処理によって微細かつ均一な金属組織を形成することができ、高い磁石特性の発現を可能にする。

【0134】本発明のナノコンポジット磁石用原料合金の製造方法によれば、合金のX線回折におけるブラッグ反射ピークを指標として用いて、合金形成のための冷却過程を制御することが可能になる。このため、冷却速度を最適化することや、管理することが容易になり、磁石特性に優れたナノコンポジット磁石のための原料合金を安定して製造することができるようになる。

【0135】本発明のナノコンポジット磁石粉末の製造方法によれば、磁石化熱処理によって微細かつ均一な金属組織を制御性よく形成することができるので、磁石特性に優れた磁石を高いスループットで提供することが可能になる。

【0136】本発明のナノコンポジット磁石によれば、優れた磁石特性が発揮されるので、モータやアクチュエータなどの特性を低いコストで向上させることができる。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】(a)は、本発明によるナノコンポジット磁石用原料合金を製造する方法に用いる装置の全体構成例を示す断面図であり、(b)は急冷凝固が行われる部分の拡大図である。

【図2】本発明によるナノコンポジット磁石を製造する方法に用いる熱処理装置の例を示す断面図である。

【図3】(a)は第1の実施例のX線回折パターンを示すグラフであり、(b)は比較例1のX線回折パターンを示すグラフである。

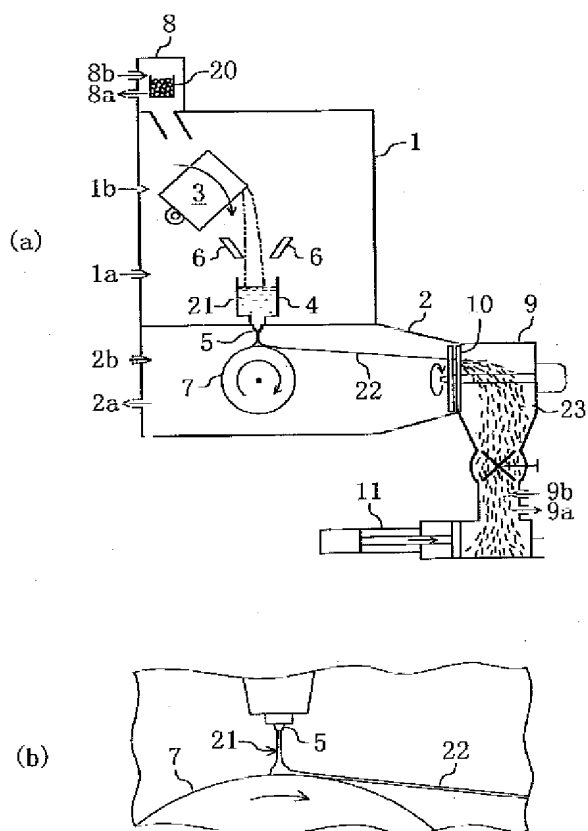
【図4】比較例2のX線回折パターンを示すグラフである。

【図5】第2の実施例のX線回折パターンを示すグラフである。

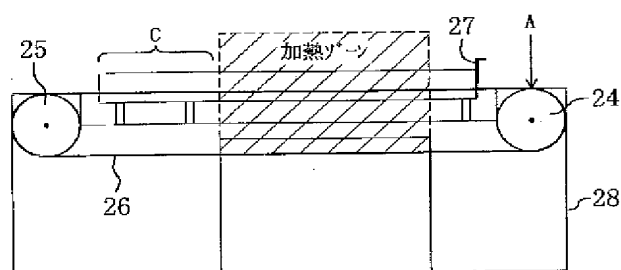
#### 【符号の説明】

- 1b、2b、8b、および9b 雰囲気ガス供給口
- 1a、2a、8a、および9a ガス排気口
- 1 溶解室
- 2 急冷室
- 3 溶解炉
- 4 貯湯容器
- 5 出湯ノズル
- 6 ロート
- 7 回転冷却ロール
- 10 破断機10
- 11 圧縮機
- 21 溶湯
- 22 合金薄帯
- 23 合金薄片
- 28 本体
- 24 回転ロール
- 25 回転ロール
- 26 フープベルト
- 27 摺切板

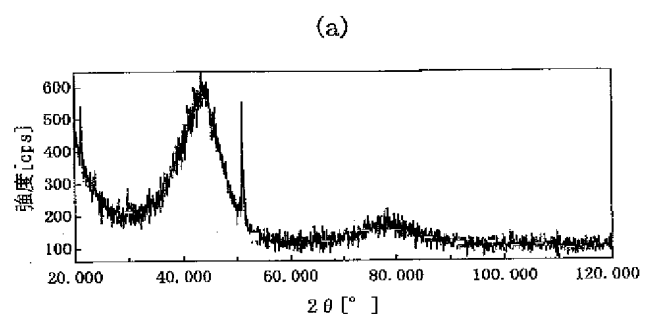
【図1】



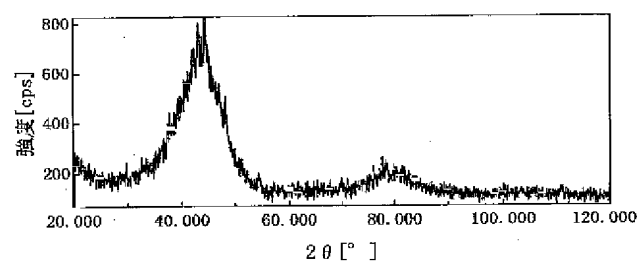
【図2】



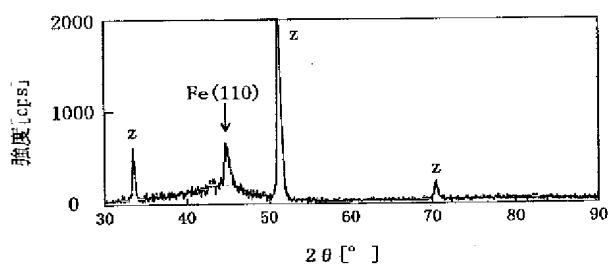
【図3】



(b)

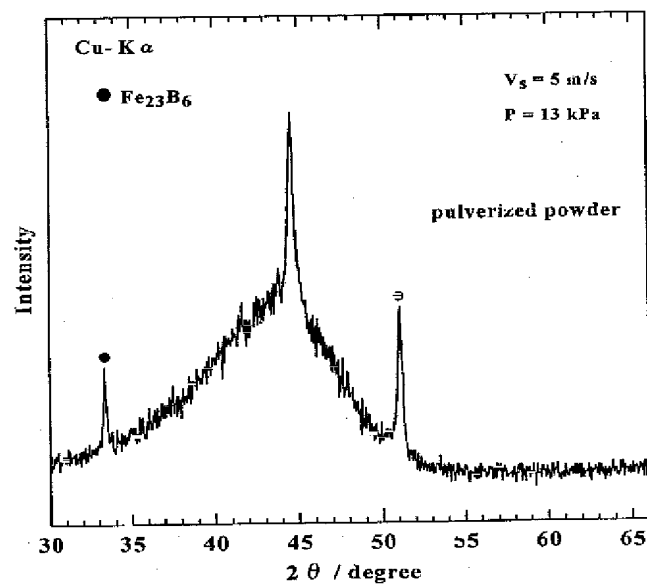


【図4】





【図5】




---

フロントページの続き

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	(参考)
H 0 1 F 1/06		H 0 1 F 1/06	A

(72)発明者 重本 恭孝	Fターム(参考)	4K018 AA27 BA18 BB01 BB06 BC01
大阪府三島郡島本町江川2丁目15番17号		BC08 BD01 GA04 KA46
住友特殊金属株式会社山崎製作所内		5E040 AA04 AA19 BD01 CA01 HB11
		HB15 HB17 NN01 NN06 NN17
		NN18